

Steinhof, Axel

Disbui QU Mainz

1989

Messung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen

Dissertation
zur Erlangung des Grades
"Doktor der Naturwissenschaften"
am Fachbereich Physik
der
Johannes Gutenberg-Universität
Mainz

vorgelegt

von

Axel Steinhof

Mainz, März 1989

1. Gutachter: Prof. Dr. E. Roeckl
2. Gutachter: Prof. Dr. E. W. Otten
Tag der mündlichen Prüfung: 29.6.89

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1 Altersbestimmung	1
1.2 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)	5
2. ^{41}Ca-AMS am UNILAC	11
2.1 Experimenteller Aufbau	12
2.2 Messung des ^{40}Ca -Stromes	19
2.3 Nachweis der ^{41}Ca -Ionen	20
2.4 Transmission	28
2.5 Ergebnisse und Diskussion	36
3. Anreicherung von ^{41}Ca	39
3.1 Extraktion	41
3.2 Analysiermagnet	44
3.3 Bernas-Nier-Ionenquelle	47
3.4 Anreicherung	54
4. ^{41}Ca - AMS der angereicherten Proben	63
4.1 Experimenteller Aufbau	65
4.2 Messungen	69
4.3 Diskussion	77
5. Produktion von ^{41}Ca in der Natur	81
5.1 Neutronenproduktionsraten	81
5.2 Neutronenfluß und ^{41}Ca -Produktion	89
5.3 Variationen der ^{41}Ca -Konzentration	92
5.4 Folgerungen für die ^{41}Ca -Altersbestimmung	95
5.5 Messung der Erosion mit ^{41}Ca	97
6. Zusammenfassung	101
Literaturverzeichnis	103
Anhang	111



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41554422_0057

1. Einleitung

In der Natur wird das instabile Calcium-Isotop ^{41}Ca (Halbwertszeit ca. 10^5 Jahre) aus dem stabilen Isotop ^{40}Ca unter Einwirkung der Höhenstrahlung gebildet. Die ^{41}Ca -Konzentrationen von Proben hängen deshalb von deren Beschaffenheit, Vorgeschichte und Standort ab. Diese Abhängigkeiten lassen viele Anwendungen, wie z.B. eine Altersbestimmung von Fossilien, durch Messung der ^{41}Ca -Konzentration möglich erscheinen. Die Überprüfung dieser Möglichkeiten erfordert eine systematische Untersuchung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen, die wiederum Methoden zur Messung von ^{41}Ca -zu- ^{40}Ca -Verhältnissen im Bereich von 10^{-15} voraussetzt. Eine derartige Überprüfung ist Thema der vorliegenden Arbeit, deren Schwergewicht folglich nicht auf der Messung einzelner ^{41}Ca -Konzentrationen liegt, sondern auf der Entwicklung von Meßmethoden zur Bestimmung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen.

Die Meßmethode, die in dieser Arbeit weiterentwickelt wurde, ist die Beschleunigermassenspektrometrie, im folgenden abgekürzt als AMS (von Accelerator Mass Spectrometry). Es wurden zwei Wege zur Steigerung der Empfindlichkeit der ^{41}Ca -AMS parallel beschritten. Zum einen wurde die Möglichkeit der ^{41}Ca -AMS am UNILAC untersucht (Kapitel 2), zum anderen wurde ein Verfahren zur Anreicherung entwickelt (Kapitel 3), mit dem natürliche ^{41}Ca -Konzentrationen auch an anderen Beschleunigern gemessen werden können. Die Durchführbarkeit der Messung von angereicherten Proben wurde am 14UD-Pelletron Tandem in Israel gezeigt (Kapitel 4). Neben diesen methodischen Entwicklungen wurde die natürliche ^{41}Ca -Produktion abgeschätzt und die Ergebnisse dieser Rechnungen herangezogen zur Interpretation der bisherigen Meßergebnisse und zur Begründung eines Vorschlag zur Messung von Erosionsraten mit ^{41}Ca (Kapitel 5).

1.1 Altersbestimmung

Das Interesse an der Messung von ^{41}Ca in natürlichen Proben wurde vor allem durch den Vorschlag einer ^{41}Ca -Datierungsmethode ([Yam63], [Rai79]) hervorgerufen, die eine Lücke in den datierbaren Zeiträumen schließen sollte. Die Halbwertszeit des ^{41}Ca von 103 000 Jahren* verspricht einen Datierungszeitraum von 50 000 - 1 000 000 Jahren [Rai79]. Von Fossilien dieses Zeitraumes sind in den meisten Fällen nur die Hartteile erhalten, die bei den höheren Wirbeltieren überwiegend aus Calciumapatit $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ bestehen, also einen hohen Calcium-Gehalt haben.

* Dieser Wert von [Mab74] ist mit einem Fehler von $\pm 4\%$ angegeben. Bei korrekter Fehlerbetrachtung liegt die Unsicherheit jedoch im Bereich von $\pm 20\%$.

Natürliches Calcium enthält auch ^{41}Ca , welches im Erdboden aus ^{40}Ca durch Einfang von höhenstrahlungsinduzierten Neutronen gebildet wird und über die Pflanzen in den biologischen Kreislauf gelangt. Das in den Lebewesen eingelagerte ^{41}Ca zerfällt dort zwar, wird aber durch den Stoffwechsel und in situ-Produktion ständig ergänzt. Die ^{41}Ca -Konzentration C_{41} , unter der im folgenden die Zahl der ^{41}Ca -Atome bezogen auf die Gesamtzahl von Calcium-Atomen verstanden wird, sollte deshalb konstant bleiben. Die ^{41}Ca -Zufuhr durch den Stoffwechsel endet beim Tod des Lebewesens. Auch die in situ-Produktion wird in der Regel stark reduziert, denn die heutigen Fossilien müssen entweder gleich in Höhlen geschützt oder schnell in Sedimente eingebettet worden sein, sonst wären sie nicht erhalten geblieben. Diese schützenden Gesteins- und Erdschichten schirmen aber auch die Höhenstrahlung ab und reduzieren damit die in situ-Produktion.

Das einfachste Modell der ^{41}Ca -Datierung geht davon aus, daß in den lebenden Organismen die ^{41}Ca -Konzentration einen allgemeinen Wert C_{41}^0 hat, der nicht vom individuellen Lebewesen abhängt. Für die Knochen (oder andere Hartteile), die während der Fossildiagenese (Lagerung) keinen Calcium-Austausch mit der Umgebung hatten, läßt sich dann das Alter t des Fossils aus der Abnahme des ^{41}Ca -Konzentration C_{41} berechnen aus

$$C_{41}(t) = C_{41}^0 \exp\left(\frac{-\ln 2}{t_{1/2}} t\right), \quad (1.1)$$

wobei $t_{1/2}$ die Halbwertszeit von ^{41}Ca ist. Die für die Durchführbarkeit der Altersbestimmung entscheidende der offenen Fragen ist, ob die ^{41}Ca -Konzentrationen der lebenden Organismen sich wirklich durch einen allgemeinen Wert C_{41}^0 beschreiben lassen, der eventuell von der geographischen Region oder der Tierart, nicht aber von anderen Parametern abhängt. Falls eine ^{41}Ca -Datierung durchführbar ist, gibt es zahlreiche Anwendungen, denn in die letzten 1 000 000 Jahre (mittleres bis spätes Pleistozän) fallen wichtige Schritte in der Evolution des Menschen, sowohl anatomisch als auch kulturell und technologisch gesehen. Bezüglich der Chronologie und der Umstände dieser Entwicklung bestehen noch viele offene Fragen. Ungeklärt ist z. B., ob die Entwicklung langsam und kontinuierlich verlief oder schubweise mit Zwischenperioden geringer Veränderungen. Die ältesten Funde des archaischen Homo sapiens sind zwischen 120 000 und 400 000 Jahren alt. Der moderne Homo sapiens existiert in seiner heutigen Form seit 30 000 Jahren. Hat sich der Übergang an einem Ort vollzogen oder erfolgte diese Entwicklung an mehreren Orten parallel? Wie breitete sich der neue Menschentyp aus? Welche Rolle spielte der Neanderthaler in der Entwicklung des modernen Menschen? Bei diesen und anderen Fragen der Paleoanthropologie ([Isa72], [Tay88]) könnte eine ^{41}Ca -Datierung zur Klärung beitragen, denn es besteht ein Mangel an zuverlässigen, allgemein anwendbaren Datierungsmethoden für diesen Zeitraum.

Die erfolgreichste und bekannteste Methode zur Altersbestimmung ist die Radiokohlenstoff-Datierung, die auf dem Nachweis von ^{14}C beruht. Diese Methode ist jedoch z. Zt. auf 70 000 Jahre beschränkt (Tabelle 1.1). Diese, wie auch die anderen in Tabelle 1.1 gemachten Angaben, beziehen sich auf ideale Bedingungen, welche für jede Methode spezifisch sind, wie am Beispiel der Kalium/Argon Methode erläutert werden soll. Bei dieser Datierung wird der ^{40}Ar -Gehalt eines Gesteins, der aus dem ^{40}K -Zerfall (Halbwertszeit $1,3 \times 10^9$ Jahre) resultiert, gemessen. Die "Uhr" steht für flüssige Gesteinschmelzen auf Null, da aus diesen das gasförmige Argon entweicht und startet bei der Erstarrung, die zu einem Einschluß des Argons im Gestein führt. Ideale Bedingungen für diese Methode sind deshalb hoher Kalium-Gehalt, geringste Argon-Konzentration zur Zeit der Erstarrung und große Beständigkeit gegen Argon-Diffusion. Unter weniger idealen Bedingungen, die aber eher der Praxis entsprechen, können Gesteine erst ab einem Alter von 5×10^5 Jahren mit dieser Methode datiert werden.

Tabelle 1.1 : Datierungsmethoden von Fossilien aus dem Pleistozän. Die Klassifizierung als "Versuchsstadium" erfolgte nach [Tay87]. Abhängig von der jeweiligen Methode gibt es nicht aufgeführte Bedingungen an die datierbaren Materialien.

Datierungsart		Methode [Referenzen]	datierbares Material	Zeitbereich (Jahre vor heute)
direkt	absolut	Radiokohlenstoff [Sch87],[Tay87]	Knochenkollagen, Holz	< 70 000
	relativ	FUN [Oak63],[Wil82]	Knochen	---
indirekt	absolut	Kalium/Argon [Fit72]	Gesteine	> 100 000
		Thermolumineszenz [Wag87]	Quarz, Feldspat	< 300 000
		Uranserien [Kor82]	Gesteine	< 300 000
		Spaltspuren [Mom86], [Wag85]	Minerale	50 000 - 10^7
		Paläomagnetismus [Mom86]	Sedimente	---
	relativ	Diffusionsmethoden [Mom86]	Obsidian, Gesteine	< 20 000
direkt, absolut (Versuchsstadium)		Elektronenspinresonanz [Ike78]	Knochen, Gesteine	< 10^6
		Aminosäure-Razemisation [Bad85]	Aminosäure	< 10^6
indirekt, absolut (Versuchsstadium)		Obsidian-Hydration [Hom86]	Obsidian	< 20 000
		Thermolumineszenz [Wag87]	Minerale	< 10^6

Die meisten Datierungsmethoden für den interessierenden Zeitraum sind indirekt (Tabelle 1.1), d.h. sie datieren nicht Bestandteile des Fossils selbst, sondern die Schicht, in der diese eingebettet waren. Dies ist eine zusätzliche Fehlerquelle, die zur methodenbedingten Unsicherheit hinzukommt, insbesondere bei kleineren Fundstücken (siehe "Beispiele der Radiocarbon-Datierung" bei [Mom86]). Außerdem lassen sich die indirekten Methoden nur unter speziellen Gegebenheiten anwenden. Mit der Kalium/Argon-Methode z. B. lassen sich im allgemeinen nur Funde aus Schichten bestimmter Gesteine datieren, die aus Vulkan-Tätigkeit resultieren. Das schränkt die Anwendungen erheblich ein. Die anderen in Tabelle 1.1 aufgeführten Methoden haben ebenfalls spezifische Anwendungen und teilweise erhebliche Unsicherheiten. Aus diesen Gründen sind die meisten der zuverlässig datierten Funde entweder jünger als 5×10^4 Jahre (^{14}C) oder älter als 10^6 Jahre (Kalium/Argon) [Isa72]. Für eine ausführliche Diskussion wird auf [Mom86] bzw. [Isa72] verwiesen.

Zusammenfassend gesagt, resultiert das große Interesse am Nachweis geringer ^{41}Ca -Mengen aus der Hoffnung auf eine ^{41}Ca -Datierung, die zur Klärung vieler offener Fragen der Evolution des Menschen im Pleistozän beitragen könnte und das Defizit an Datierungsmethoden für diesen Zeitraum abbauen würde.

1.2 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

1.2.1 Prinzipien der AMS

Die in den vergangenen 10 Jahren entwickelte Methode der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS von Accelerator Mass Spectrometry) erlaubt die Messung auch sehr niedriger Konzentrationen von Isotopen bis zu relativen Häufigkeiten von 10^{-15} . Die AMS basiert auf den Prinzipien der klassischen Massenspektrometrie, erweitert um die Beschleunigungs- und Teilchenidentifikations-Techniken der experimentellen Kernphysik (Abb. 1.1). Das Probenmaterial, dessen Untersuchung gewünscht wird, wird in die Ionenquelle eingebracht. Der aus der Ionenquelle extrahierte Ionenstrahl wird massengetrennt beschleunigt, eventuell nach Geschwindigkeit gefiltert und zum AMS-Detektor geleitet. Dort werden die Ionen analysiert und gezählt.

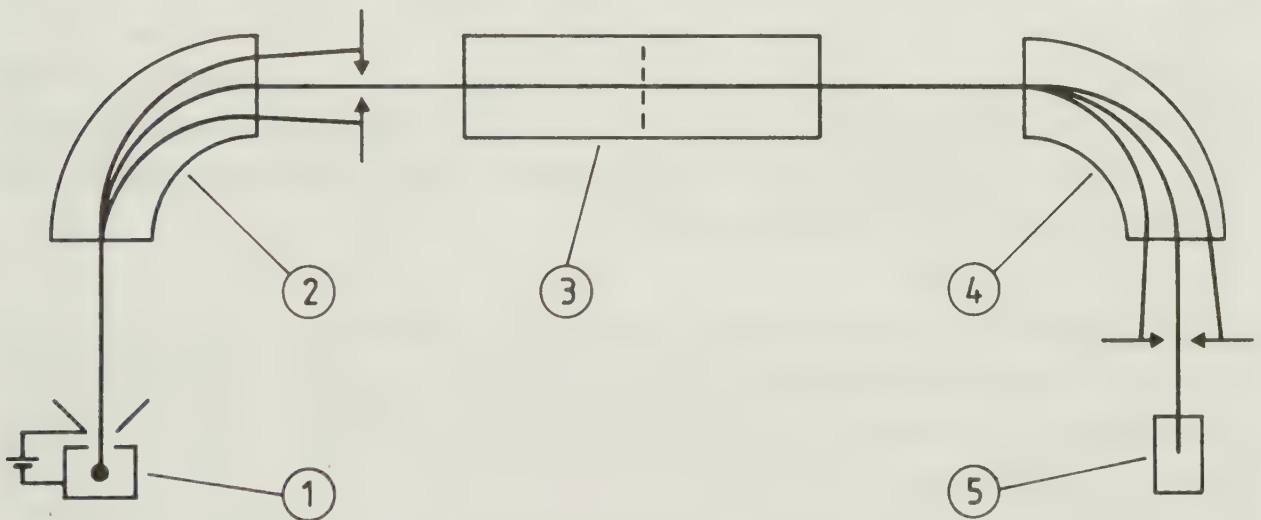


Abb 1.1: Schematischer Aufbau eines AMS-Systems. Die Komponenten sind: 1) Ionenquelle mit Probe, 2) Magnet mit nachfolgendem Schlitz, 3) Beschleuniger mit Gas- und/oder Folienstripper, 4) Magnet mit nachfolgendem Schlitz, 5) AMS-Detektor.

Der Grund für die Verwendung von Beschleunigern als Teil der Nachweisapparatur liegt hauptsächlich in der Möglichkeit der Element-Identifikation der Ionen. Bei der konventionellen Massenspektrometrie werden die positiven oder negativen Ionen elektrostatisch bis auf einige keV beschleunigt und dann durch magnetische und eventuell elektrische Felder analysiert. Auf diese Weise lassen sich jedoch nur die Verhältnisse E/q und A/q bestimmen, wobei E , A , q Energie, Masse und Ladung der Ionen symbolisieren. Aus diesem Grund ist keine Unterscheidung möglich zwischen

- Molekülen mit derselben Masse und Ladung;
- isobaren Ionen, z. B. ^{41}K und ^{41}Ca ;

- Ionen mit demselben A/q -Wert, (diese besitzen bei elektrostatischer Beschleunigung auch denselben E/q -Wert, wie z. B. $^{82}\text{Kr}^{2+}$ und $^{41}\text{Ca}^{1+}$).

Diese Beschränkung verhindert im allgemeinen die Messung sehr kleiner Isotopenhäufigkeiten, da - abhängig von den chemischen Eigenschaften des durch AMS zu untersuchenden Elementes - immer Verunreinigungen vorhanden sind. Aufgrund der hohen Strahlenergie bei der AMS können als zusätzliche Parameter die Energie E und der Energieverlust dE/dx gemessen werden. Nach der vereinfachten Bethe-Bloch-Gleichung

$$-\frac{dE}{dx} \propto A \frac{Z^2}{E} \quad (1.2)$$

erhält man für Ionen mit verschiedener Kernladung Z verschiedene Hyperbeln in der $(dE/dx, E)$ -Ebene und somit eine Möglichkeit zur Z -Trennung.

Der molekulare Untergrund wird durch Umladung der hochbeschleunigten Ionen in einem Gas- oder Folienstripper eliminiert, da hochionisierte Moleküle instabil sind und dissoziieren. In manchen Fällen ist eine elementspezifische Selektivität dadurch erreichbar, daß das unerwünschte Isobar den für AMS gewählten Ionentyp entweder nicht bildet oder dieser zu kurzlebig ist, um bis zum Detektor zu gelangen. Auf diese Weise läßt sich im Fall von ^{41}Ca -AMS mit negativen Ionenquellen ein Untergrund aus ^{41}K -Ereignissen durch Verwendung von $^{41}\text{CaH}_3^-$ -Ionen unterdrücken. Daneben werden je nach Beschleuniger und betrachtetem Isotop verschiedene Analyse-Techniken angewandt wie Flugzeitmessung [Fin84] oder Ausnutzung verschiedener Reichweiten [Kle82].

Zusammenfassend läßt sich AMS dadurch charakterisieren, daß hierbei einzelne Ionen nach Masse A und Kernladungszahl Z identifiziert werden, und die so bestimmte Rate mit dem Strom des Referenzisotopes verglichen wird. Zu Messungen von Konzentrationen wie C_{41} ist neben der Zahl des weniger häufigen ("gesuchten") Isotops, ^{41}Ca , auch die zugehörige Zahl der Ionen eines (häufigeren) Referenzisotops ^{40}Ca notwendig. Diese Messung des Referenzisotopes mit dem AMS-Detektor ist - unter anderem wegen der Filterwirkung des Beschleunigers und wegen der Zählratenbegrenzung des Detektors - nicht gleichzeitig möglich. An Beschleunigern, die einen Wechsel von einem Isotop zum anderen schnell, einfach und reproduzierbar ermöglichen, ist es deshalb üblich, in regelmässigen Intervallen das Referenzisotop in einem Faraday-Cup nahe beim AMS-Detektor zu messen, z. B. [Sut84]. Wegen den hohen Anforderungen an die Trennschärfe sind die für ^{41}Ca -AMS geeigneten Beschleuniger zu komplex zur Anwendung dieses Prinzips. In diesen Fällen mißt man den Strom I des Referenzisotops* am Anfang des Beschleunigers und berechnet die Konzentration C mit Hilfe der Transmission T , die diese Ionen

* Alle Stromangaben in dieser Arbeit sind elektrische Ströme (und keine Teilchenströme), im Fall der gepulsten UNILAC-Ionenströme sind die Angaben über die Pulsperioden gemittelte Effektivströme.

vom Ort der Strommessung bis zum AMS-Detektor (inklusive Nachweiswahrscheinlichkeit) haben:

$$C = \frac{N}{(qe IS)^{-1} \bar{I} \times \bar{T} t} \quad (1.3)$$

mit	N	Zahl der Ereignisse des gesuchten Isotops
	q	Ladung der Ionen bei der Strommessung
	e	Elementarladung
	IS	Isotopenanteil des Referenzisotops
	$\bar{I} \times \bar{T}$	zeitlicher Mittelwert von $I \times T$
	t	Meßzeit.

Ein AMS-System (Beschleuniger und Detektor) kann durch zwei Größen charakterisiert werden, und zwar durch die Empfindlichkeit S^* ("Sensitivity") und durch das Untergrund-Niveau U . Die Empfindlichkeit ist für AMS-Systeme definiert als die Konzentration, bei der im Mittel noch 1 Ereignis pro Stunde nachgewiesen wird:

$$S = \frac{qe IS}{\bar{I} \times \bar{T}} \cdot \frac{1}{3600s} \quad (1.4)$$

Der Untergrund bei AMS Messungen resultiert i.a. aus den Ereignissen anderer Ionen, die durch beschränktes Auflösungsvermögen nicht von den Ereignissen des gesuchten Isotops unterschieden werden können. Deswegen kann man erwarten, daß der Untergrund proportional zum Produkt $(I \times T \times t)$ ist und folglich ist es sinnvoll das Untergrund-Niveau U als die Konzentration anzugeben, die durch die Zahl der falsch identifizierten Ereignisse vorgetäuscht wird. Sowohl S als auch U sollten nicht mit einer Nachweisgrenze gleichgesetzt werden. Diese folgt, im Fall vernachlässigbaren Untergrundes, aus der Empfindlichkeit nur mit weiteren Vorgaben wie maximaler Meßzeit und geforderter Mindestzahl von Ereignissen, und ist somit vom Zweck der Messung abhängig. Auch das Untergrund-Niveau entspricht nicht einer Nachweisgrenze, in die neben der Empfindlichkeit, Faktoren wie Fluktuationen des Untergrundes und angestrebte Genauigkeit eingehen. Man beachte, daß die Angaben für beide Größen nur jeweils für ein Isotop gelten und auch von der Vorbehandlung der Proben, z. B. der chemischen Reinheit, beeinflußt werden.



* Die Größe S wird teilweise auch als "Nachweisgrenze" bezeichnet (z.B. bei [Kub83]). Dies ist aber irreführend, wie weiter unten diskutiert wird.

Zur Messung der Transmission gibt es, je nach Beschleuniger und zu untersuchendem Isotop, verschiedene Methoden:

1. Ermittlung der Transmission mit einer Kalibrierungsprobe. Mit einer Gleichung analog zu Gleichung (1.3) wird aus der bekannten Konzentration die Transmission berechnet. Für die eigentlichen Messungen werden bei dieser Methode konstante Transmissionen angenommen. Beispiele der Anwendung gibt es für ^{10}B [Kle82] oder ^{36}Cl [Kub84].
2. Messung der Transmission mit einem anderen Isotop. Z. B. wurde bei der im Kapitel 4 besprochenen ^{41}Ca -AMS die Transmission durch eine magnetische Strahlführung mit einem ^{40}Ca -Strom der "richtigen" magnetischen Steifigkeit $B\rho$, d.h. geänderter Energie, gemessen.
3. Bestimmung der Transmission mit einem Pilotstrahl. Hierbei muß die Transmission des Pilotstrahls auf elementabhängige Effekte korrigiert werden z. B. hinsichtlich unterschiedlicher Stripper-Ausbeuten. Dieses Verfahren wurde, soweit bekannt, noch nicht in AMS angewandt. Erste Versuche werden in Kapitel 2 beschrieben.

Die Empfindlichkeit von AMS hängt, im Gegensatz zu Messungen des radioaktiven Zerfalls, nicht von der Lebensdauer des gesuchten Isotops ab, so daß der Einsatz von AMS bei begrenzten Probenmengen und langer Halbwertszeit besondere Vorteile bietet. Aus einer 10 mg schweren Chlor-Probe mit $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 4 \times 10^{-13}$ können mit AMS in einer Stunde 100 ^{36}Cl -Ereignisse gemessen werden [Kub84], während man dafür bei einer Messung des radioaktiven Zerfalls ($t_{1/2} = 3,0 \times 10^5$ a) selbst bei 100 % Nachweiswahrscheinlichkeit 236 Tage benötigen würde. Im Fall von ^{41}Ca sind die natürlichen ^{41}Ca -Konzentrationen noch um 2 Größenordnungen niedriger als die von ^{36}Cl im oben angeführten Beispiel. Außerdem zerfällt ^{41}Ca über Elektroneneinfang (EC) in den Grundzustand von ^{41}K , wobei nur weiche Röntgenstrahlung bis maximal 3,3 keV (Fluoreszenzausbeute 16%) und Auger-Elektronen emittiert werden. Bei dieser niedrigen Energie sind die Probleme mit Selbstabsorption in der Probe und Untergrund kaum lösbar und deshalb wurde AMS als der geeignetste Weg zur Messung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen angesehen.

1.2.2 Entwicklung der ^{41}Ca -AMS

Wie groß das durch [Rai79] hervorgerufene Interesse an ^{41}Ca -AMS war zeigt die große Zahl von Forschergruppen, die diesbezüglich Aktivitäten entwickelten (Tabelle 1.2). Mit den in den ersten Jahren erreichten Empfindlichkeiten waren die natürlichen ^{41}Ca -Konzentrationen um 10^{-14} nicht meßbar. Dies lag an den niedrigen Stromwerten im Bereich von 10^2 nA für die an Tandem-Beschleunigern benötigten negativen Calcium-Ionen. Da keine Steigerung der negativen Calcium-Ströme in Aussicht war, wurde 1981 vorgeschlagen, die Empfindlichkeit durch

Voranreicherung über elektromagnetische Isotopentrennung zu senken. Dieses wurde dann auch experimentell an einem Massenseparator vom Typ SIDONIE untersucht [Rai81b]. 1985 wurde diese Idee, mit Beginn dieser Arbeit am GSI-Mittelstromseparator, der ebenfalls vom Typ SIDONIE ist, wieder aufgegriffen. Noch vor Abschluß dieses Projektes erfolgte die erste Messung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen nach einer Voranreicherung mit einem CALUTRON-Massentrenner des Oak Ridge National Laboratory, USA [Hen87]. Das Ergebnis für einen Kuhknochen aus Illinois, USA, lag am oberen Ende des theoretisch abgeschätzten Bereiches, was die Nutzung des ^{41}Ca zum Datieren aussichtsreich erscheinen ließ.

Anfang 1987 wurde im Rahmen dieser Arbeit mit ^{41}Ca -AMS am UNILAC der GSI begonnen. Da der UNILAC positive Ionen verwendet, wurden höhere Calcium-Ströme und somit niedrigere Empfindlichkeiten erreicht. Wie aus Tabelle 1.2 ersichtlich, erfolgte 1988 ein Durchbruch bezüglich der Empfindlichkeit an Tandem-Beschleunigern. Dies wurde durch neue Entwicklungen bei negativen Ionenquellen [Sha87] möglich. Auf diese Weise konnten bisher zwei Forschungsgruppen Messungen von ^{41}Ca -Konzentrationen direkt, d.h. ohne Voranreicherung, durchführen ([Mit88a], [Kut88a]).

Tabelle 1.2 : Erreichte Empfindlichkeiten von ^{41}Ca -AMS an verschiedenen Beschleunigersystemen in zeitlicher Reihenfolge. Der ATLAS-Beschleuniger ist wegen deutlicher Verbesserung der Empfindlichkeit doppelt aufgeführt. Die Empfindlichkeiten wurden teilweise aus Strom und Transmission (Gl. 1.4) oder aus Zahl der Ereignisse, Meßzeit und ^{41}Ca -Konzentration errechnet.

Beschleuniger	Standort (Land)	Empfindlichkeit	Referenz
ALICE, Linac & Zyklotron	Orsay (Frankreich)	2×10^{-13}	[Rai80]
EN Tandem	Bruyeres-le-Chatel (")	----	[Rai81a]
MP Tandem	München (BRD)	10^{-12} - 10^{-13}	[Ern83]
12 MV Tandem	Rochester (USA)	5×10^{-13}	[Elm84]
14UD-Pelletron, Tandem	Rehovot (Israel)	$(0.5-1)10^{-13}$	[Fin84]
ATLAS, FN Tandem & Linac	Argonne (USA)	5×10^{-14}	[Hen87]
MP Tandem & Linac	München (BRD)	9×10^{-13}	[Kor 87]
AVG Zyklotron	Osaka (Japan)	1×10^{-12}	[Ita87]
UNILAC, Linac	Darmstadt (BRD)	2×10^{-15}	[Ste87]
FN Tandem	Philadelphia (USA)	2×10^{-16}	[Mid88a]
ATLAS, FN Tandem & Linac	Argonne (USA)	3×10^{-15}	[Kut88a]

2. ^{41}Ca -AMS am UNILAC

Die im folgenden dargelegten Experimente stellen zusammen mit [Ern84] die erste Anwendung von AMS am UNILAC-Beschleuniger der GSI in Darmstadt (Abb. 2.1) dar. Die experimentellen Ergebnisse stammen aus drei Strahlzeiten von jeweils 2 Tagen im Januar 1987, August 1987 und März 1988. Bei der ersten Strahlzeit lag der Schwerpunkt auf der ^{41}Ca -Identifikation mit dem Detektor des Magnetspektrometers, bei der zweiten Strahlzeit wurde damit begonnen, das Transmissionsverhalten des UNILAC zu untersuchen. Wegen zahlreicher Ausfälle im UNILAC-Bereich während dieser Strahlzeit, wurde das Transmissionsverhalten in der dritten Strahlzeit erneut untersucht.

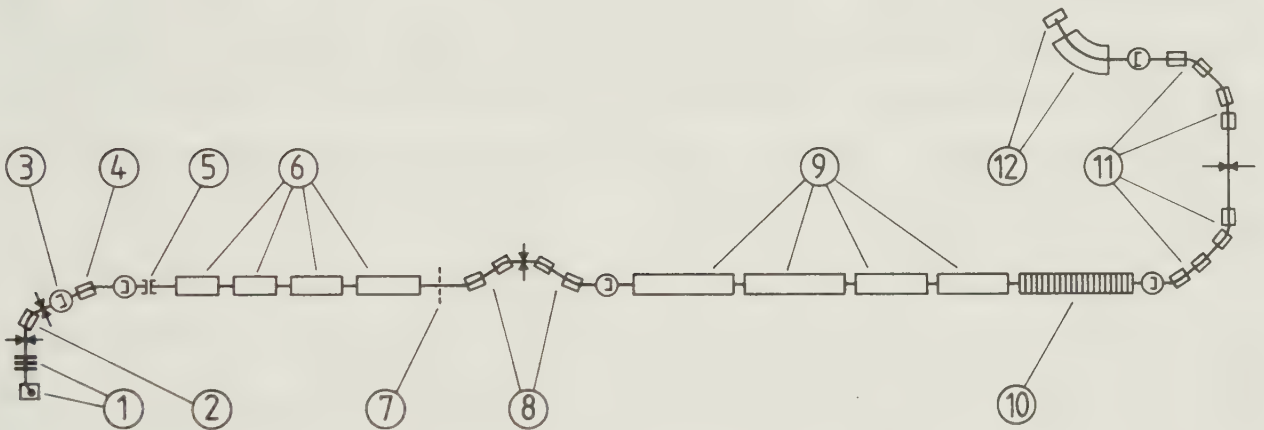


Abb. 2.1 UNILAC-Beschleuniger mit der bei der ^{41}Ca -AMS verwendeten Strahlführung:

1) Penning-Sputter-Ionenquelle in einem 110° -Dipolmagneten und elektrostatische Vorbeschleunigungsstrecke, 2) 77° -Dipolmagnet mit Schlitzen am Ein- und Ausgang, 3) Faraday-Cup, 4) 12° -Dipolmagnet, 5) Buncher, 6) Wideröe-Beschleuniger, 7) Gasstripper, 8) Ionenladungsseparator, 9) Alvarez-Beschleuniger, 10) Einzelresonatoren, 11) 180° -Strahlführung mit Dispersionschlitz, 12) Magnetspektrograph mit Detektor. Nur diejenigen Faraday-Cups und Schlitze sind dargestellt, die eine besondere Bedeutung für die ^{41}Ca -AMS hatten. Der Strahlweg hat eine Länge von 160 m.

Nach Schilderung des experimentellen Aufbaues (Abschnitt 2.1) wird auf die Messungen des ^{40}Ca -Stroms I (Abschnitt 2.2), der Zahl der ^{41}Ca -Ereignisse N_{41} (Abschnitt 2.3) und der Transmission T (Abschnitt 2.4) eingegangen, die zur Bestimmung der ^{41}Ca -Konzentration notwendig sind (siehe Gleichung 1.3). Das Kapitel schließt mit einer Erörterung der am UNILAC erzielten Ergebnisse (Abschnitt 2.5).

2.1 Experimenteller Aufbau

2.1.1 Ionenquelle und Injektion

Die verwendete Penning-Sputter-Ionenquelle (Abb. 2.2) entspricht dem bei der GSI verwendeten Standardtyp. Die mit 50 Hz gepulste Penning- Entladung des Hilfsgases sputtert Calcium aus der Elektrode, welches dann in der Entladung ionisiert wird. Die Elektroden bestanden aus Titan-Tiegeln, in die das Calcium vorher eingeschmolzen worden war. Die Fläche aus Calcium war der Entladung zugewandt und betrug $45 \times 4 \text{ mm}^2$. Bei Strömen von $^{40}\text{Ca}^{3+}$ von etwa $50 \mu\text{A}$, die nach dem 77° -Dipolmagneten (Abb. 2.1) gemessen wurden, lag der Calcium-Verbrauch bei 40 mg/Stunde, was einer Effizienz von ca. 5×10^{-4} entspricht. Als Entladungsgas wurde Neon verwendet, weil dessen Ionen wegen der großen Unterschiede im A/q von den Ca^{3+} -Ionen gut separiert werden können. Dies ist bei Argon (Ar^{3+}) und Krypton (Kr^{6+}) nicht gegeben. Die Ionenquelle war in einem 110° - Magneten montiert. Dessen Magnetfeld von 4×10^3 Gauß diente sowohl zur Stabilisierung der Entladung als auch zu einer Vorseparation des 3^+ -Ladungszustandes von Calcium von dessen anderen Ladungszuständen und denen des Neons.

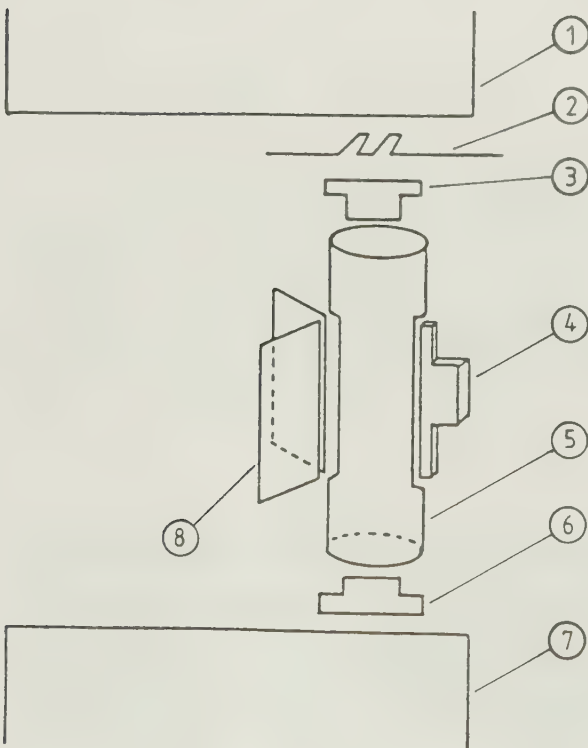


Abb. 2.2 Schematische Darstellung einer Penning-Sputterquelle:

1) Polschuh des 110° -Dipolmagneten, 2) Filament, 3) Kathode, 4) Sputterelektrode, 5) Wand der Entladungskammer, die als Anode fungierte, 6) Antikathode, 7) zweiter Polschuh des 110° -Dipolmagneten, 8) Extraktionselektrode.

Die in der Entladung gebildeten Ionen wurden extrahiert mit einer Gleichspannung von 12,6 kV, die zwischen Ionenquelle und Extraktionselektrode anlag. Diese Extraktionselektrode war verbunden mit der Hochspannungsplattform auf 147 keV über Erdpotential. Auf diese Weise durchfielen die Ca^{3+} -Ionen eine Gesamtbeschleunigungsspannung von 159,6 kV. Die resultierende Geschwindigkeit v entspricht einer spezifischen Energie von 11,7 keV/u und somit der Akzeptanz des Wideröe.

$$v = \sqrt{2 U \frac{q}{A} \frac{e}{u}} \quad (2.1)$$

mit U Gesamtbeschleunigungsspannung,
 A Masse der Ionen in u und
 u Nukleonenmasse.

Man beachte, daß A hier nicht für die ganzzahlige Massenzahl steht, sondern sich von dieser durch den Massendefekt unterscheidet. - Die Ionen wurden in der Injektion von drei Dipolmagneten (110° , 77° und 12° , Abb. 2.1) hinsichtlich ihrer magnetischen Steifigkeit $B\rho$ analysiert,

$$B\rho = v \frac{A}{q} \frac{u}{e} = \sqrt{2 U} \cdot \sqrt{\frac{u}{e}} \cdot \sqrt{\frac{A}{q}} \quad (2.2)$$

und somit nach A/q getrennt.

2.1.2 Der UNILAC

Der UNILAC ist ein Hochfrequenz-Linearbeschleuniger, bestehend aus mehreren Teilen mit unterschiedlichen Beschleunigerstrukturen, nämlich dem Wideröe, dem Alvarez und den Einzelresonatoren ([Mül72], [Sch70]). Die in der Injektion elektrostatisch vorbeschleunigten Ionen werden zeitlich gebündelt ("bunching") und in den Wideröe geleitet.

Im Wideröe sind Elektroden in einer Reihe angeordnet, die abwechselnd an je einem von zwei Polen einer Wechselspannungsquelle mit einer Hochfrequenz (HF) von 27,1 MHz liegen. Dieses HF-Feld bildet eine stehende Welle (Wellenlänge $\lambda = 11$ m) mit dem Wideröe als Koaxial-Lecherleitung, wobei die Vakuum-Kammerwand den Aussenleiter (auf Erdpotential) bildet. Die Ionen werden durch das zwischen den Elektroden liegende longitudinale elektrische HF-Feld beschleunigt. Die Beschleunigung erfolgt durch die ansteigende Phase der positiven Halbwelle, dies hat den Vorteil einer Geschwindigkeits-Fokussierung. Ionen, die zu schnell sind, erfahren eine geringere Beschleunigung, weil der Feldgradient vor dem Scheitel geringer ist, und zu langsame Ionen werden stärker beschleunigt. (Aus dem gleichen Grund beschleunigen auch der

Alvarez und die Einzelresonatoren mit der ansteigenden Phase.) Damit die Ionen abgeschirmt werden von den abfallenden positiven und den negativen Phasen der Hochfrequenz sind die Elektroden als Driftröhren ausgelegt. Die Länge der Driftröhren ist durch die Synchron-Bedingung gegeben, d.h. sie beträgt ein ganzzahlig Vielfaches von $v/c \times \lambda/2$. Deshalb ist die Geschwindigkeit der Ionen v durch die Bauart festgelegt und zwar entspricht die Endenergie für den Wideröe einer spezifischen Energie von 1,4 MeV/u. In jeder Driftröhre, die am Außenleiter und somit auf Erdpotential angebracht ist, sind Quadrupole zur Fokussierung untergebracht. Diese sind zur Kompensation der Defokussierung nötig, die aus der Beschleunigung durch die ansteigende Phase resultiert.

Aus Gründen der HF-Leistungsbegrenzung ist für die Weiterbeschleunigung der Ladungszustand $q = 3^+$ zu niedrig. Deswegen wurden die $^{41}\text{Ca}^{3+}$ -Ionen durch einen N_2 -Gasstripper umgeladen und im nachfolgenden Ladungsseparator (magnetische Umlenkstrecke) der $^{41}\text{Ca}^{9+}$ -Zustand selektiert. Um die Ausbeute der Umladung zu optimieren, wurde diese als Funktion des Gasdruckes am Stripper gemessen (Abb. 2.3). Für die AMS-Messungen wurde der Gasdruck vor der Düse des Gasjets auf 500 Torr eingestellt. Die Wahl des Ladungszustandes $q = 9^+$ bedeutet einen Verzicht auf Filterwirkung durch diese Umladung, denn alle Ionen mit $A/q \simeq 41/3$ (vor dem Stripper), wie z. B. $^{55}\text{Mn}^{4+}$, können wegen ihres höheren Z auch den dreifachen Ladungszustand bilden. Der Vorteil besteht darin, die Grundeinstellung (Abschnitt 2.4.1) mit $^{82}\text{Kr}^{6+}$ bzw. $^{82}\text{Kr}^{18+}$ durchführen zu können. Dies ist bei Verwendung von $^{41}\text{Ca}^{10+}$ -Ionen nicht möglich, da die Stripper-Ausbeute für $^{82}\text{Kr}^{20+}$ zu gering ist.

Nach der Stripper-Sektion werden die Ionen zur Anpassung an die geänderte HF-Frequenz von 108.5 MHz des Alvarez und den nachfolgenden Einzelresonatoren erneut zeitlich gebündelt ("rebunching"). Im Alvarez werden die E_{010} -Schwingungsmoden eines Hohlraumresonators zur Ionenbeschleunigung benutzt. Auch im Alvarez ist die spezifische Endenergie der Ionen durch die Längen der Driftröhren festgelegt, und zwar auf 11,4 MeV/u.

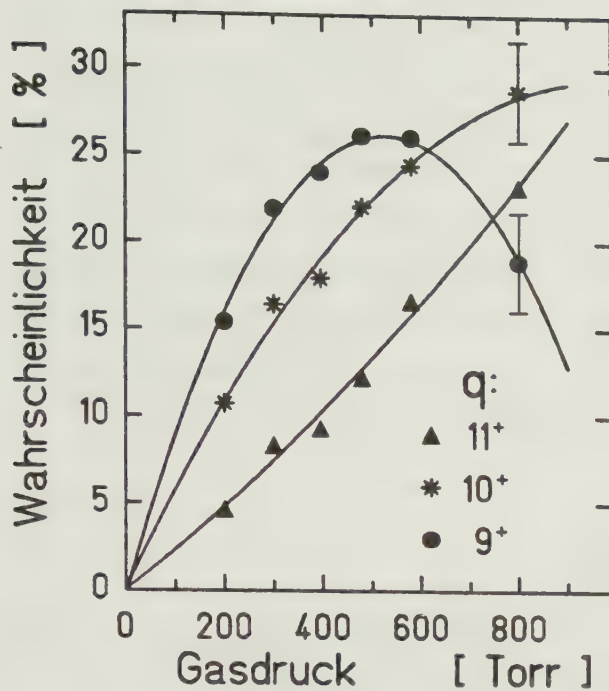


Abb. 2.3 Stripper-Ausbeuten am N_2 - Gasstripper des UNILAC für $^{40}Ca^{3+}$ bei 1,4 MeV/u. Auf der Abszisse ist der Gasdruck vor der Düse des Gasjets aufgetragen. Nach [Fra75] entsprechen 200, 500 und 800 Torr 13, 36 und 61 $\mu g/cm^2$ Flächenbelegung im Strahlweg. Nach [Erb78] würde man aber schon ab 15 - 25 $\mu g/cm^2$ Gleichgewichtsladungsverteilungen, also konstante Ausbeuten, erwarten. Die Angabe der Flächenbelegungen ist somit sehr unsicher.

In den Einzelresonatoren sind die beschleunigenden HF-Felder ebenfalls E_{010} - Schwingungen von Hohlraumresonatoren. Die Phasen der Einzelresonatoren können allerdings unabhängig eingestellt werden, wodurch Variationen der Ionenenergie in einem weiten Bereich möglich werden. Dieser Bereich hängt ab von dem Masse- zu Ladungsverhältnis A/q , dem Tastverhältnis der Strahlpulse und der maximalen HF-Leistung. Um für $^{41}Ca^{9+}$ eine Option auf ein Tastverhältnis von 40% zu haben (benutzt wurden bislang 25%), wurde die Endenergie auf 14,3 MeV/u beschränkt.

Der UNILAC ist nicht nur geschwindigkeitsfokussierend, sondern auch geschwindigkeitsselektiv. Ionen, die außerhalb des Toleranzbandes (ca. 30° auf der ansteigenden HF-Phase) eingeschossen werden, werden nicht beschleunigt. Auf diese Weise wird eine große Massenauflösung des UNILAC erreicht, denn die verschiedenen Filterungen von Injektion, UNILAC und Strahlführung zum Magnetspektrometer, sind antikorreliert. Untergrund-Ionen, die z. B. aufgrund von Energieverlusten nach Streuprozessen das gleiche $B\rho$ wie ^{41}Ca in der Injektion haben, werden aufgrund ihrer von ^{41}Ca verschiedenen Geschwindigkeit herausgefiltert. Analog unterstützt die Geschwindigkeitsfokussierung die jeweils nachfolgende $B\rho$ -Separation in der Stripper-Sektion und im 180° -Strahlzweig. Auf diese Weise wird ^{40}Ca so gut herausgefiltert, daß es die ^{41}Ca - Messung am Magnetspektrometer, trotz der bis zu 10^{15} -fach grösseren Intensität nicht beeinträchtigt. Dies gilt nicht für Ionen mit gleichem A/q , wie ^{41}K und ^{82}Kr mit der doppelten Ionenladung. Diese Ionen werden vom UNILAC nicht herausgefiltert und müssen am Detektor separiert werden.

2.1.3 180°-Strahlführung und Magnetspektrometer

Die Strahlführung zum Magnetspektrometer führt über eine 180°-Ablenkung. Sie kann so eingestellt werden, daß sie eine große Dispersion in der Mittelebene (nach 90°-Ablenkung) hat. An dieser Stelle kann man durch Schlitze die Energieunschärfe des UNILAC-Strahles (typisch $\Delta E/E \approx 0.3\%$) verbessern. Die zweite Hälfte der Strahlführung wird im allgemeinen so eingestellt, daß das Gesamtsystem achromatisch ist. Abb. 2.4 zeigt die Enveloppen, d.h. die einhüllende Kurve einer Schar von Ionenbahnen, für eine typische UNILAC-Emittanz von $0.01 \pi \text{ mm rad}$. In der Mittelebene ist die Dispersion $D = \Delta x/(\Delta p/p) = 54 \text{ mm}/\%$, d.h. für eine Impulsdifferenz von $0,1\%$ ist der Schwerpunkt der Ionenbahn um $5,4 \text{ mm}$ verschoben.

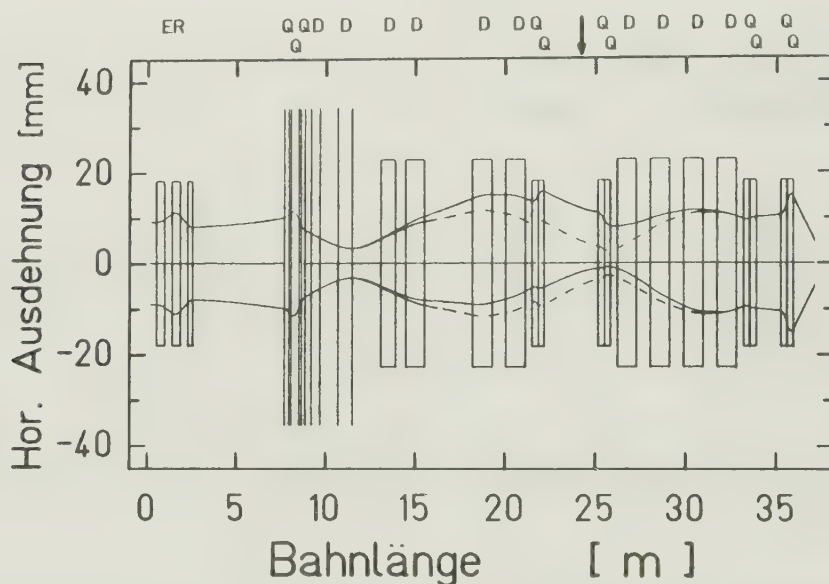


Abb. 2.4 Berechnete horizontale Enveloppen für die Strahlführung zum Magnetspektrographen. Positive Werte stellen eine Strahlausdehnung nach links (in Strahlrichtung), negative Werte nach rechts dar. Die Berechnungen wurden mit dem Programm "MIRKO" [Fra84] durchgeführt. Die gestrichelten Linien zeigen die Enveloppen von Ionen mit dem zentralen Impuls. Die durchgezogenen Linien stellen die Enveloppen von Ionen mit einer Impulsdifferenz von $0,1\%$ dar. Die ionenoptischen Komponenten sind durch die Buchstaben am oberen Rand gekennzeichnet: ER Einzelresonatoren (zu sehen sind die letzten drei), Q Quadrupole und D Dipole. Die Höhe der Kästchen gibt die Größe des ionenoptisch nutzbaren Bereiches wieder. Die Position des Dispersionsschlitzes (bei ca. 24 m) ist durch den Pfeil angedeutet. Für die Berechnungen wurde eine Emittanz von $0,01 \pi \text{ mm rad}$ zugrunde gelegt.

Durch die 180°-Strahlführung gelangt der Strahl zum GSI-Magnetspektrometer [Sch83]. Dieses wurde konzipiert zum Studium von Kernreaktionen mit schweren Ionen (Abb. 2.5). Die ionenoptischen Elemente und ihre Funktion sind:

- a) Der Sextupol S1 beeinflusst die vertikale Ausdehnung des Strahlflecks.
- b) Die beiden Quadrupole Q1 und Q2 fokussieren den Strahl in beiden Ebenen.
- c) Der Dipolmagnet mit einem Ablenkwinkel von 45° dient zur Impulsanalyse der Ionen.
- d) Der Sextupol S2 justiert die Neigung der Fokalebene, die im allgemeinen senkrecht zum Strahl eingestellt wird.
- e) Mit dem Quadrupol Q3 kann die Dispersion im Bereich von 2 bis 7 cm/% variiert werden.

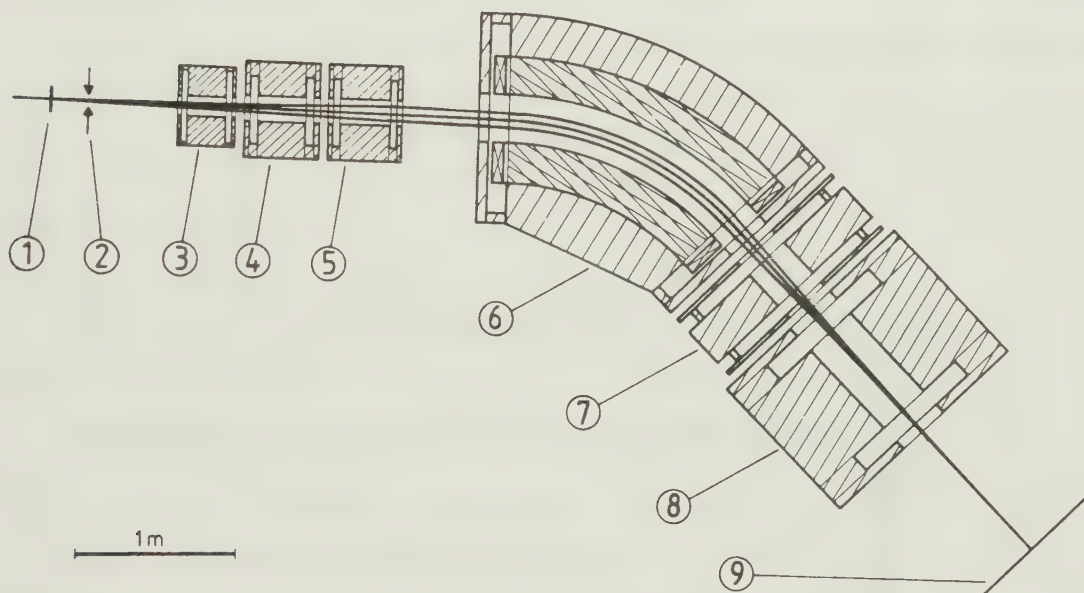


Abb. 2.5 Schematische Ansicht des Magnetspektrometers:

1) Position der Stripper-Folie, 2) Schlitze, 3) Sextupol S1, 4) Quadrupol Q1, 5) Quadrupol Q2, 6) Dipol, 7) Sextupol S2, 8) Quadrupol Q3, 9) Detektor, auch als Fokalebene-Detektor bezeichnet (Abb. 2.6). Die Figur wurde [Sch83] entnommen.

In der Fokalebene des Magnetspektrographen befindet sich der Detektor (Abb. 2.6), ebenfalls konzipiert zum Studium von Kernreaktionen. Er besteht aus einer Ionisationskammer, in deren Anoden im vorderen und mittleren Bereich Proportionalzählrohre integriert sind. Die Anode selbst ist in neun Segmente unterteilt. Beim Durchgang eines Ions durch das Gas in der Ionisationskammer werden Ladungsträgerpaare erzeugt und von einem elektrischen Feld zur Anode bzw. Kathode gezogen. Das Frisch-Gitter schirmt die Anode ab, und erst wenn die Elektronen das Frisch-Gitter durchsetzen, influenzieren sie auf den Segmenten der Anode ein Signal. Dieses Signal ist proportional zum Energieverlust des eingefallenen Ions entlang der Spur. Auf der Anode wird somit nur der Elektronenstrom gemessen, der in dieser Geometrie nicht vom Entstehungsort abhängt. Da die Elektronen viel schneller als die Ionen sind, wird durch das Frisch-Gitter auch das zeitliche Auflösungsvermögen gesteigert.

Durch Zusammenfassen bzw. Addition der Signale wird der Energieverlust ΔE und die Gesamtenergie E_T bestimmt. Gasdruck (210 Torr CF_4) und Segmentaufteilung (Segment 1 bis 4 für ΔE) wurden so gewählt, daß bei $\Delta E \approx 0,5 \times E_T$ eine optimale Z-Auflösung (Abschnitt 2.3) resultierte. Die Auflösung des Energieverlust-Signales betrug $1,2 \% \times \Delta E$, die der Gesamtenergie $0,8 \% \times E_T$.

Die Elektronen, die in die Proportionalzählrohre gelangen, erzeugen über eine sehr große Gasverstärkung einen Ladungspuls auf dem hochohmigen Signaldraht. Die Auslesung der Signale an beiden Enden erlaubt die Ortsbestimmung über die Methode der Ladungsteilung. Die Genauigkeit beträgt 1,2 mm, wenn die Zählrate nicht größer als 2 kHz ist. Dies bedeutet bei einem Tastverhältnis des UNILAC-Strahles von 25% eine Zählratenbeschränkung von 500 Hz. Die geringe zeitliche Auflösung ist dadurch bedingt, daß wegen der Gasverstärkung auch die langsamen positiven Ionen zum Signal beitragen. Durch einen Vergleich der Ortsmessung beider Zählrohre kann der Winkel des Ions bestimmt werden.

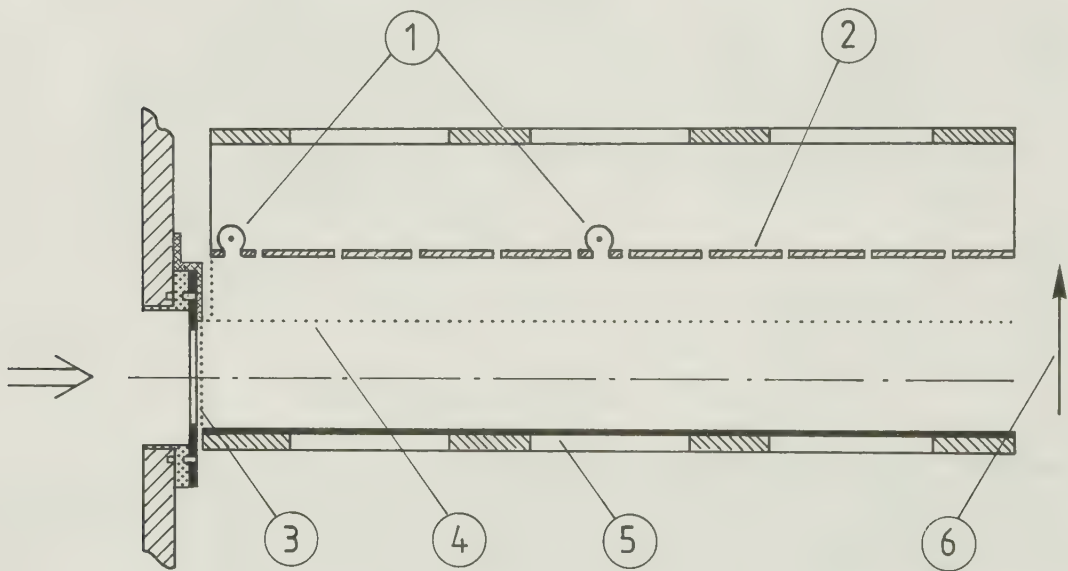


Abb. 2.6 Schematischer Schnitt durch den Fokalebenen-Detektor [Sch83]:

1) Proportionalzählrohre, 2) neunteilige Anode, 3) Eintrittsfenster, 4) Frisch-Gitter, 5) Kathode, 6) Richtung des elektrischen Feldes. Die Eintrittsrichtung des Ionenstrahles ist durch den Pfeil von links angedeutet. Die Gesamlänge des Detektors beträgt ca. 50 cm.

2.2 Messung des ^{40}Ca -Stromes

Zur Bestimmung von ^{41}Ca -Konzentrationen muß unter anderem der $^{40}\text{Ca}^{3+}$ -Strom gemessen werden. Eine ideale Messung wäre zeitlich parallel zur Zählung der ^{41}Ca -Ereignisse am Magnetspektrometer, also in einem Faraday-Cup seitlich der Zentralbahn. Wegen der notwendigen Massenauflösung müßte dieser hinter dem 77° -Dipolmagneten positioniert sein, da dort die Massenauflösung genügend groß ist. Die Ablenkung durch den Ionenquellenmagneten bewirkt jedoch, wegen dem knapp bemessenen Strahlrohrdurchmesser im Bereich nach der Ionenquelle, daß die ^{40}Ca -Ionen bei Einstellung auf ^{41}Ca zum Teil an die Wände schlagen. Die Folge sind Transmissionsverluste und damit Verfälschungen der Messung, die von dem jeweiligen Emissionsverhalten der Ionenquelle abhängen und somit zeitlich nicht konstant sind.

Aus diesem Grund erfolgte die Messung des ^{40}Ca -Stroms auf der zentralen Bahn nach Verstellen der Extraktions- und Vorbeschleunigungsspannung um berechnete Faktoren. Mögliche Unsicherheiten bei diesem Verfahren resultieren aus unterschiedlichen Extraktionsbedingungen und Raumladungseffekten. Als empfindlicher Test für diese Methode wurde die Reproduzierung der natürlichen Calcium- und Krypton-Isotopenverhältnisse untersucht. Die so ermittelte Ungenauigkeit von $\pm 20\%$ ist allerdings nur eine obere Grenze, da die Messung der Isotopenverhältnisse von Effekten beeinträchtigt wird, die bei der ^{40}Ca -Strommessung keine Rolle spielen. Dazu gehören Beimischungen anderer Ionen z.B. $^{16}\text{O}^+$ zu $^{48}\text{Ca}^+$, die nur bei den Isotopen mit geringem Strom relevant sind und nichtlineares Verhalten des Faraday-Cups bei Messungen von Strömen verschiedener Größenordnungen. Selbst eine Ungenauigkeit von $\pm 20\%$ wäre nichtsdestoweniger im gegenwärtigen Stadium tolerabel, da die Fehler bei der Transmissionsbestimmung noch wesentlich größer sind.

2.3 Nachweis der ^{41}Ca -Ionen

2.3.1 Räumliche Vorseparation

Bevor mit dem Detektor des Magnetspektrometers die Ionen bezüglich ihrer Masse A und Kernladungszahl Z identifiziert werden, müssen die Hauptkomponenten des Strahles, vor allem ^{41}K und gegebenenfalls ^{82}Kr , soweit vorsepariert werden, daß die maximal zulässige Zählrate im Detektor (~ 500 Hz) nicht überschritten wird. Aus einer Abschätzung basierend auf gleicher Ionisierungswahrscheinlichkeit für Kalium und Calcium in der Penning-Sputter-Ionenquelle, einer (typischen) Verunreinigung des Calciums mit Kalium von 10 ppm, einem $^{40}\text{Ca}^{3+}$ -Strom von $100\ \mu\text{A}$ und einer Transmission von 10^{-2} erhält man eine ^{41}K -Rate von $1.4 \times 10^6\ \text{s}^{-1}$ am Magnetspektrometer. Abgesehen von der Zählratenbeschränkung wäre damit aber auch das Auflösungsvermögen des Detektors bezüglich Z überfordert, denn bei natürlichen ^{41}Ca -Konzentrationen von 5×10^{-15} bedeutet dies ein Verhältnis ^{41}Ca zu ^{41}K von 7×10^{-9} . Deshalb ist es nötig, ^{41}Ca und ^{41}K räumlich so zu trennen, daß der ^{41}K -Strahl durch Blenden vom Detektor ferngehalten werden kann. Dieses Problem wird bei den meisten anderen Messungen von ^{41}Ca -AMS durch die Verwendung von CaH_3^- -Ionen (wie in Kapitel 4) umgangen.

Zur räumlichen Separation der Isobare ^{41}Ca und ^{41}K kommen drei Verfahren (Abb. 2.7) in Frage:

Methode des passiven Absorbers:

Aufgrund von unterschiedlichen Energieverlusten in einer Absorber-Folie oder -Gaszelle erhalten die ^{41}Ca -Ionen ein gegenüber den ^{41}K -Ionen verschobenes $B\rho$. ("Passiv" beschreibt hier den Unterschied zu "aktiven" Detektoren.) Die Umladungen in dem Absorber führen zu Ladungsspektren. Abb. 2.7a zeigt schematisch die Bahnen von je zwei Ladungszuständen des ^{41}Ca und des ^{41}K mit einem Absorber vor dem Magneten.

Separation mit einem gasgefüllten Magneten:

Dieses Verfahren basiert darauf, daß ladungsändernde Stöße der Ionen im Gas so häufig auftreten, daß die Bahnen im Magnetfeld einer über viele Stöße gemittelten Ionenladung entsprechen (Abb. 2.7b), welche elementabhängig ist (siehe z. B. [Hen86a]).

Vollstripping-Verfahren:

Bei diesem Verfahren werden durch ein $B\rho$ -Fenster nur vollgestrippte $^{41}\text{Ca}^{20+}$ -Ionen nachgewiesen. Die Separation des ^{41}K basiert darauf, daß Kalium aufgrund seiner Ordnungszahl maximal den 19^+ -Ladungszustand bilden kann (Abb. 2.7c). Analoges gilt für ^{82}Kr , dessen maximaler Ladungszustand $^{82}\text{Kr}^{36+}$ aufgrund der doppelten Masse im $B\rho$ -Wert sogar nur $^{41}\text{Ca}^{18+}$ entspricht.

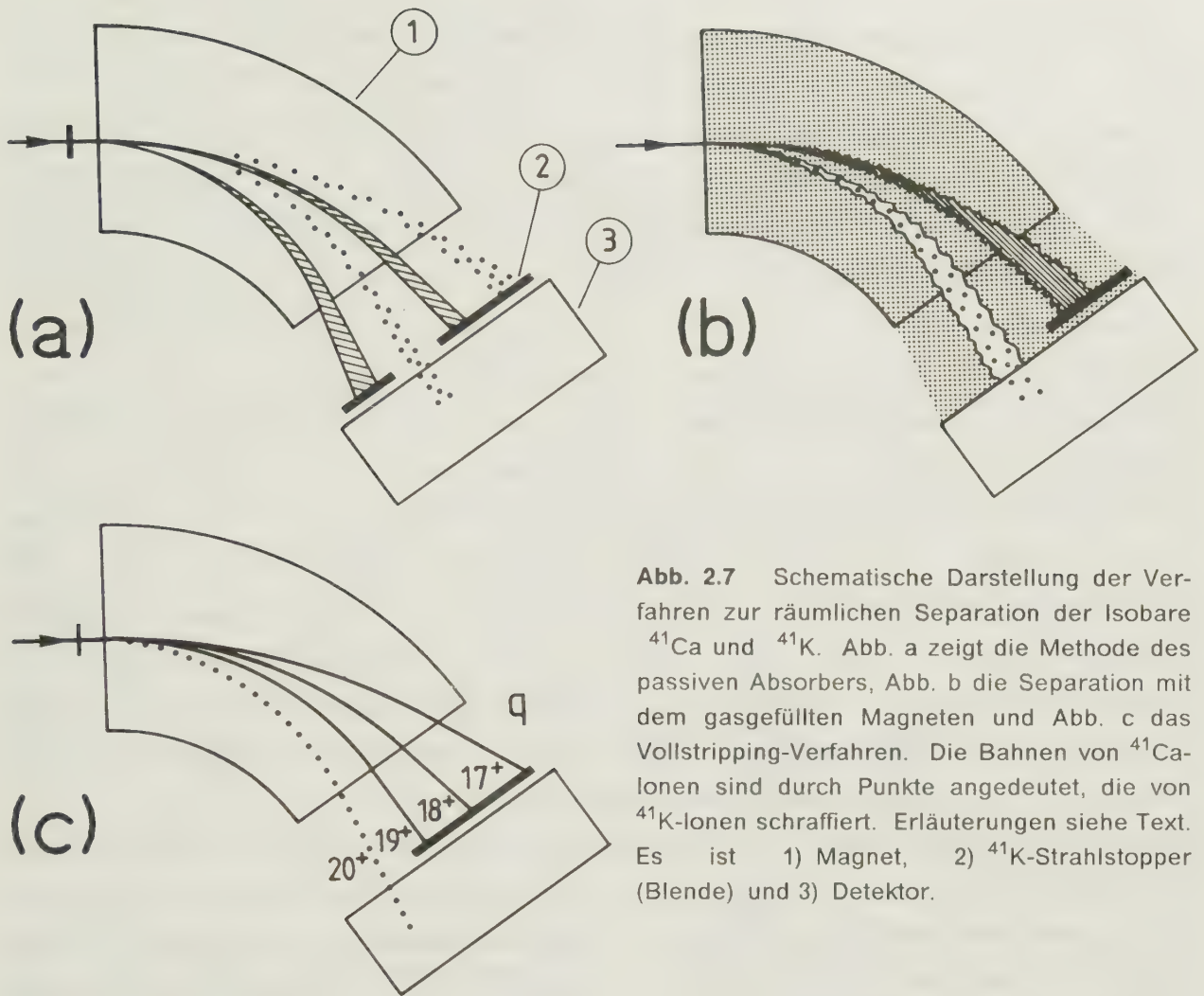


Abb. 2.7 Schematische Darstellung der Verfahren zur räumlichen Separation der Isobare ^{41}Ca und ^{41}K . Abb. a zeigt die Methode des passiven Absorbers, Abb. b die Separation mit dem gasgefüllten Magneten und Abb. c das Vollstripping-Verfahren. Die Bahnen von ^{41}Ca -Ionen sind durch Punkte angedeutet, die von ^{41}K -Ionen schraffiert. Erläuterungen siehe Text. Es ist 1) Magnet, 2) ^{41}K -Strahlstopper (Blende) und 3) Detektor.

Bei der Methode des passiven Absorbers ist dessen günstigste Dicke (Flächenbelegung) dadurch bestimmt, daß der $B\rho$ -Wert des gewählten ^{41}Ca -Ladungszustands ungefähr in die Mitte der $B\rho$ -Werte der benachbarten Zustände des ^{41}K fällt, also z. B. $^{41}\text{Ca}^{16+}$ zwischen $^{41}\text{K}^{17+}$ und $^{41}\text{K}^{16+}$. Damit die Differenz im Energieverlust entsprechend groß ist (bei dem Beispiel beträgt diese 6,2 % der Restenergie), muß der Energieverlust selbst und damit die Flächenbelegung groß sein. Für ^{41}Ca - bzw. ^{41}K -Ionen mit Eintrittsenergien von 100 bis 300 MeV liegt der notwendige Energieverlust im Bereich von 50 % der Eintrittsenergie bei Flächenbelegungen von 2,0 bis 8,4 mg/cm² (berechnet für Kohlenstoff-Absorber nach [Nor70]). Dies bewirkt eine große Verbreiterung der Energie- und damit der Ortsverteilung in der Fokalebene durch das Energieverlust-Straggeling δE und durch Inhomogenitäten des Absorbers. δE beträgt bei obigen Werten ca. 1,5 % der Restenergie (FWHM, berechnet nach Gl.5 aus [Gei83]), wobei die Inhomogenitäten je nach Material des Absorbers und dessen Dicke auch größere Beiträge zur Verbreiterung der Energie- bzw. Ortsverteilung liefern. Diese Verbreiterung bewirkt eine Erhöhung des ^{41}K -Ausläufers an der Position von ^{41}Ca in der Fokalebene und gleichzeitig eine Vergrößerung des offenen Detektorbereiches, der aus der Breite der ^{41}Ca -Verteilung resultiert.

Mit dieser Methode erreichte Untergrundsunterdrückungen von z. B. ^{36}Cl gegenüber ^{36}S (bei 88 MeV) liegen deshalb nur im Bereich von drei Größenordnungen [Hen81].

Bei der Separation mit einem gasgefüllten Magneten beruht die Differenz im $B\rho$ zwischen den Isobaren vor allem auf der Differenz in der mittleren Ladung, die für ^{41}Ca gegenüber ^{41}K bei $4,5\% \times q$ liegt (für 100 bis 300 MeV [Hen86]). Die Breite der Verteilungen als Funktion des Gasdruckes durchläuft ein Minimum. Unterhalb davon steigt mit abnehmenden Gasdruck die $B\rho$ -Breite aufgrund zu geringer Zahl von Umladungsstößen, oberhalb tritt mit zunehmenden Gasdruck vermehrt Kleinwinkelstreuung und Energieverlust-Straggling auf. Die erreichbare Trennung nach diesem Verfahren ist aber deutlich besser als die nach der Methode des passiven Absorbers. Mit geeigneten Magnetspektrographen wurden Linienbreiten $\delta B\rho/B\rho = 1,7\%$ (FWHM) bei einem Linienabstand von $\Delta B\rho/B\rho = 4,2\%$ für 200 MeV ^{41}Ca - und ^{41}K -Ionen erreicht [Hen87]. Bei einer angenommenen Gauß-Verteilung entspricht dies einer Unterdrückung des ^{41}K im ^{41}Ca -Fenster (Breite: 2σ) von 2×10^{-6} . Dieser Gasdruck mit minimaler Linienbreite hängt von der Energie ab, wobei aber die Flächenbelegungen von derselben Größenordnung sind wie die des passiven Absorbers und somit auch das Energieverlust-Straggling ähnlich ist. Die Benutzung des Energiesignals des nachfolgenden Detektors zur Identifikation der ^{41}Ca -Ionen wird dadurch eingeschränkt.

Das GSI-Magnetspektrometer ist allerdings für das Verfahren des gasgefüllten Magneten nicht sehr gut geeignet, weil das Verhältnis der Strecke im Dipolmagneten zu der Gesamtstrecke im Gas ungünstig ist (außerhalb des Dipols findet nur Strahlaufstreuung, jedoch keine Trennung statt). In Vorversuchen wurde für ^{74}Ge -Ionen mit 13 MeV/u Eintrittsenergie eine minimale Breite $\Delta(B\rho) / B\rho = 2,0\%$ (FWHM) bei 20 mbar N_2 -Gasfüllung gemessen [Sch88]. Dies ist trotz der höheren Energie pro Nukleon schlechter als bei [Hen87].

Bei beiden bisher diskutierten Verfahren führen höhere Strahlenergien zu einer besseren Trennschärfe der ^{41}Ca -Identifikation im Detektor und zwar aufgrund höherer Restenergie nach dem Absorber bzw. der Gasfüllung. Jedoch steigt die Zahl von Kernreaktionen drastisch, sobald die Energie im Schwerpunktsystem die Summe von Coulomb-Schwelle und Reaktions-Q-Wert überschreitet. Für z. B. die Reaktion $^{12}\text{C}(^{41}\text{K}, ^{41}\text{Ca})^{12}\text{B}$ beträgt die Coulomb-Schwelle 22,0 MeV, der Betrag des Q-Wertes 13,8 MeV und damit die Energie-Schwelle im Laborsystem 158 MeV. Die Produkte aus Kernreaktionen beeinträchtigen den ^{41}Ca -Nachweis nicht im Hinblick auf die Zählratenbeschränkung, sondern wegen der produzierten ^{41}Ca -Ionen. Im Prinzip können diese von den ^{41}Ca -Ionen aus dem UNILAC-Strahl aufgrund ihres Energieverlustes in der Kernreaktion ($\geq |\text{Q-Wert}|$) unterschieden werden. In der Praxis wird jedoch die Trennfähigkeit durch das Energieverlust-Straggling so eingeschränkt, daß die Strahlenergie gerade bei hohen ^{41}K -Raten nicht wesentlich über obige Schwelle gesteigert werden kann. Deshalb sind dieses Verfahren nicht für die ^{41}Ca -AMS am UNILAC geeignet.

Im Gegensatz dazu sind die benötigten Flächenbelegungen bei Anwendung des Vollstripping-Verfahrens auch bei hohen Strahlenergien vergleichsweise gering. Diese sind sogar notwendig, um eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit zu erreichen, d.h. hohe Wahrscheinlichkeiten einer Umladung in den vollgestrippten Zustand $F(q=Z)$. $F(q=Z)$ läßt sich für Gleichgewichtsdicken nach dem semiempirischen Verfahren von [Ste89] abschätzen. Demnach (Abb. 2.8) benötigt man im Fall von ^{41}Ca für $F(q=Z) = 50\%$ eine Energie um 350 MeV, die mit dem UNILAC problemlos erreichbar ist.

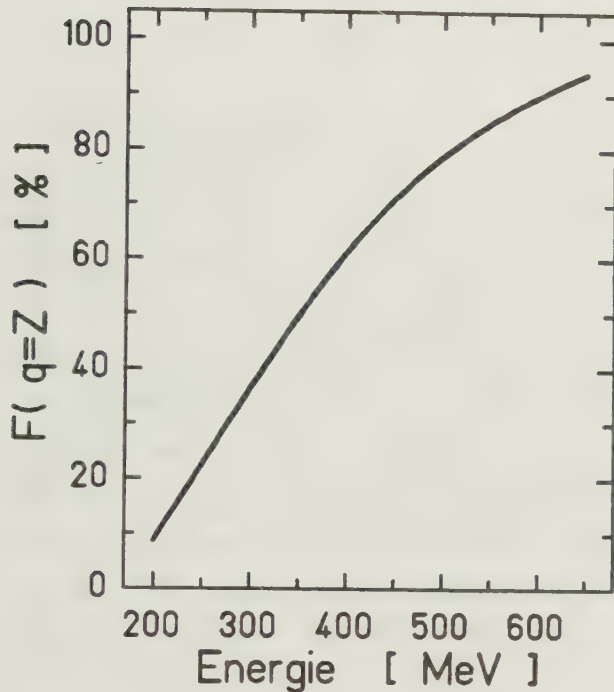


Abb. 2.8 Nach dem Verfahren von [Ste89] abgeschätzte Vollstripp-Wahrscheinlichkeit für ^{41}Ca .

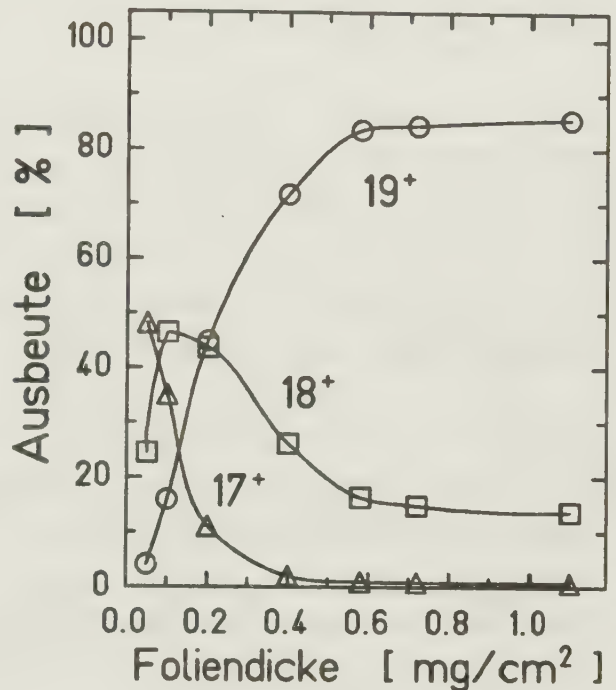


Abb. 2.9 Stripper-Ausbeuten für $^{41}\text{K}^{9+}$ -Ionen mit einer Eintrittsenergie von 14,3 MeV/u in Kohlenstofffolien verschiedener Dicke. Der nicht dargestellte 16^{+} -Ladungszustand erreichte 3,3 % Besetzungswahrscheinlichkeit bei einer Foliendicke von 100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ und weniger als 0,3 % für Dicken über 200 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Bei AMS-Messungen, bei denen es im allgemeinen auf geringen Untergrund ankommt, ist eine Stripper-Folie mit Gleichgewichtsdicke nicht ideal, und Kompromisse wie eine Vollstripp-Wahrscheinlichkeit um $0.8 \times F(q=Z)$ bei halber Gleichgewichtsdicke sind sinnvoll. Bei den in diesem Kapitel beschriebenen Messungen mit ^{41}Ca -Ionen von 586 MeV (14,3 MeV/u) wurden für 420 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Kohlenstoff-Folien eine Vollstripp-Wahrscheinlichkeit von 68 % gemessen. Wie die Messung der Ladungsverteilungen von ^{41}K bei gleicher Energie (Abb. 2.9) zeigt, ist mit dieser Dicke der angestrebte Kompromiß gut erfüllt. Im Vergleich zu den oben diskutierten Verfahren ist die Flächenbelegung aber in jedem Fall viel geringer. Dies führt zu einer geringeren Untergrundrate aus Kernreaktionen und besserer Energieauflösung (da δE klein). Die

Flächenbelegung der Stripper-Folie ist sogar so gering, daß die Kalium-Rate im offenen Detektorbereich nicht aus dem Energieverlust-Stragglings resultiert, sondern vor allem aus Schlitzstreuung (Abschnitt 2.3.2). Analoges gilt für die Linienbreite der ^{41}Ca -Ortsverteilung und damit die Größe des offenen Detektorbereiches, hierbei hat z. B. die Energieunschärfe des UNILAC-Strahls einen nennenswerten Anteil. Aus diesen Gründen wurden alle Messungen am UNILAC mit dem Vollstripping-Verfahren durchgeführt.

2.3.2 Identifikation von ^{41}Ca

Die Identifikation der ^{41}Ca -Ionen erfolgt aus den Meßwerten Energieverlust ΔE , Gesamtenergie E_T und magnetische Steifigkeit $B\rho$. Die Messung von $B\rho$ erfolgte hierbei durch Ortsbestimmung in der Fokalebene. Zur Auswertung werden die Ereignisse durch Bedingungen (Fenster) analysiert. Fenster, bei denen die Bedingungen an zwei Parameter korreliert sind, lassen sich anschaulich in Scatterplots darstellen, in denen jedes Ereignis als Punkt in der von den jeweiligen Parametern aufgespannten Ebene abgebildet wird. Abb. 2.10a zeigt einen solchen Scatterplot E_T gegen ΔE mit Ereignissen, die mit einer Kalibrierungsprobe aus neutronenaktiviertem Calcium mit einer ^{41}Ca -Konzentration $C_{41} = 10^{-13}$ gemessen wurden. Die Ereignisse verschiedener Elemente bilden aufgrund der Z -Abhängigkeit des Energieverlustes (Gl. 1.2) in der $(E_T, \Delta E)$ -Ebene verschiedene Hyperbeln, die in diesem Z -Bereich genügend gut getrennt werden können und in Abb. 2.10a durch die chemischen Elemente gekennzeichnet sind. Die ^{41}K Ereignisse resultieren aus Streuprozessen, die Ereignisse der anderen Elemente aus Kernreaktionen in der Stripper-Folie.

Beim zweiten Auswertungsschritt wurde ein Fenster auf die Calcium- Ereignisse (also $Z = 20$) gesetzt (Abb. 2.10a) und nur diese Ereignisse sind in Abb. 2.10c dargestellt. Aus der Kombination von Gleichung 2.3 mit 2.4 erhält man für den Zusammenhang von Gesamtenergie und magnetischer Steifigkeit die Gleichung 2.5. Demnach gehören die einzelnen Äste im $(E_T, B\rho)$ -Spektrum zu verschiedenen Werten von q^2/A .

$$E_T \propto \frac{1}{2} A v^2, \quad (2.3)$$

$$B\rho \propto v \times \frac{A}{q}, \quad (2.4)$$

$$E_T \propto (B\rho)^2 \times \frac{q^2}{A}. \quad (2.5)$$

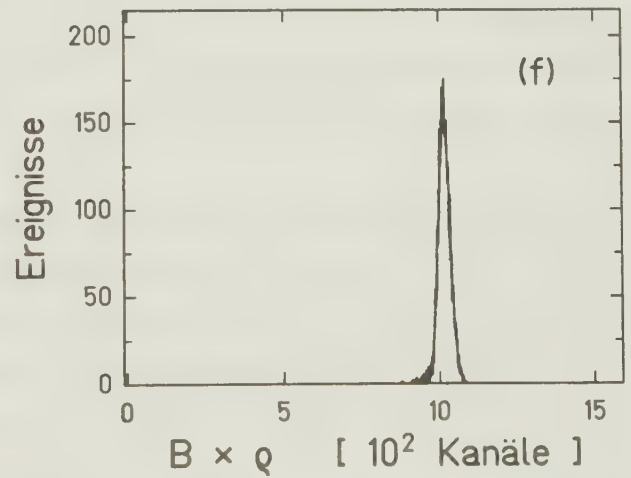
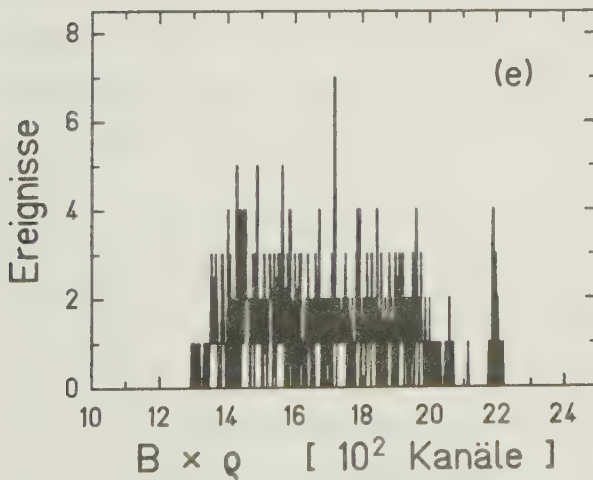
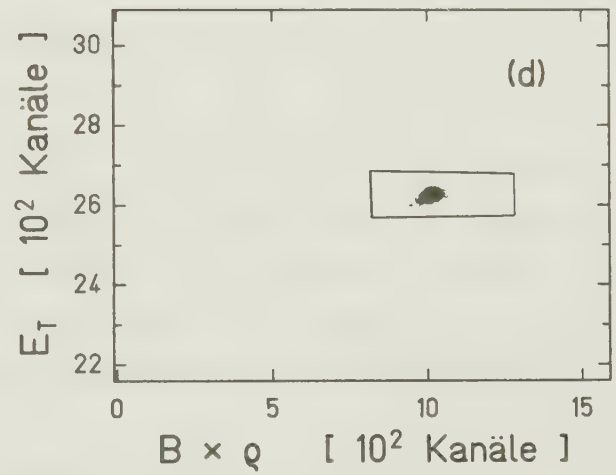
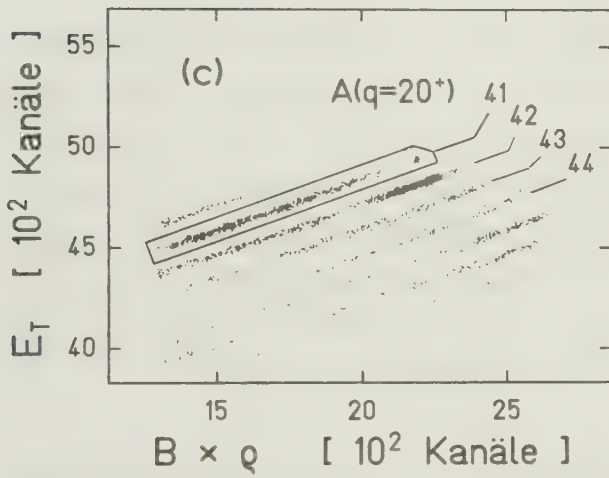
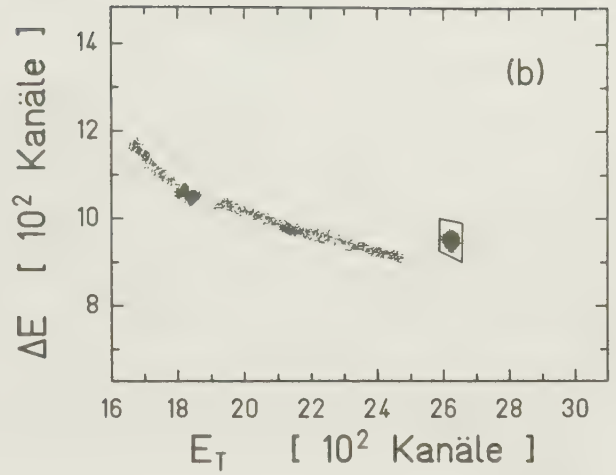
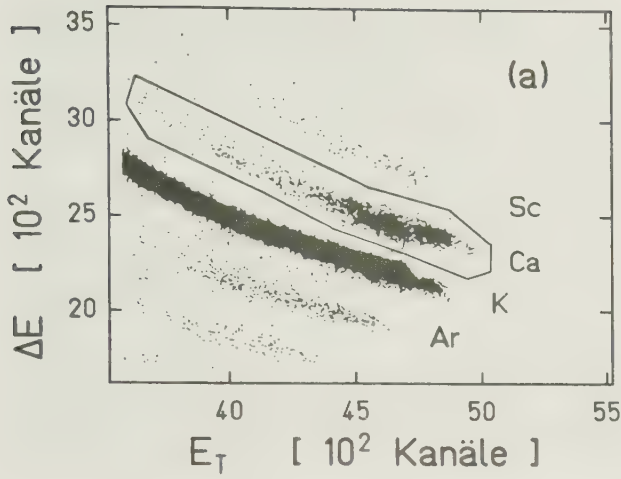


Abb. 2.10 Spektren von neutronenaktivierten Kalibrierungsproben. In Abb. a, c und e sind die Spektren einer Probe mit $C_{41} = 10^{-13}$ dargestellt, in Abb. b, d und f die Spektren einer Probe mit $C_{41} = 5 \times 10^{-11}$. Die Analyseschritte sind im Text erläutert. Die Meßzeiten betrugen 41 bzw. 32 Minuten. Die resultierenden Zahlen der ^{41}Ca -Ereignisse in Abb. e und f betragen 18 und 7339. Die Unterbrechung im Kalium-Ast in Abb. b ist auf eine schlechte ADC-Anpassung zurückzuführen, sie sind ohne Auswirkung auf die ^{41}Ca -Identifikation. 1 Kanal auf den $B\rho$ -Achsen entspricht einem $\Delta B\rho/B\rho = 5,2 \times 10^{-5}$.

Der $^{41}\text{Ca}^{20+}$ -„Ast“ kann durch die folgenden Überlegungen eindeutig identifiziert werden. Die schwereren Calcium-Isotope ^{42}Ca , ^{43}Ca , usw. können nur kleinere Werte q^2/A bilden, weil $q = 20^+$ der maximale Ladungszustand ist, und liegen deshalb bei gleichem $B\rho$ -Wert bei kleineren Energien als ^{41}Ca . Die leichteren Isotope z. B. ^{40}Ca und ^{39}Ca benötigen hingegen Energien, z. B. 600,9 MeV bzw. 616,4 MeV, um bei $q = 20^+$ in den $B\rho$ -Bereich wie $^{41}\text{Ca}^{20+}$ zu fallen. Diese Energien (höher als die Strahlenergie von 586,3 MeV) sind wegen der negativen Vorzeichen der Q-Werte entsprechender Kernreaktionen nicht möglich. Die erwartete niedrigere Energie zeigt der links von dem ($A = 41$, $q = 20^+$)-Fenster erkennbare Ast der $^{40}\text{Ca}^{20+}$ Ereignisse. Auch die Ereignisse mit $q \leq 19^+$ können die Identifikation nicht beeinträchtigen: Die $^{40}\text{Ca}^{19+}$ -Ereignisse z. B. überlappen mit den ($A = 44$, $q = 20^+$)-Ereignissen (Gl. 2.5) und werden somit deutlich getrennt.

Im nächsten Analyseschritt wurde ein Fenster auf den als $^{40}\text{Ca}^{20+}$ identifizierten Ast gesetzt und diese Ergebnisse auf die $B\rho$ -Achse projiziert (Abb. 2.10e). Hierbei sind sowohl ^{41}Ca -Ereignisse aus dem Primärstrahl als auch aus Kernreaktionen, wie z. B. $^{12}\text{C}(^{41}\text{K}, ^{41}\text{Ca})^{12}\text{B}$ mit einem Q-Wert von -13,8 MeV, enthalten. Der Q-Wert der analogen Reaktion mit ^{13}C beträgt -13,4 MeV, ist also fast ebenso groß und die der anderen möglichen Reaktionen, die zum gleichen Endkanal führen sind noch kleiner. Somit ist die Energie der ^{41}Ca -Ionen aus Kernreaktionen um mindestens 13,4 MeV geringer und im $B\rho$ -Wert deutlich getrennt von den ^{41}Ca -Ionen aus dem UNILAC-Strahl, die in Abb. 2.10c bei Kanal 2 200 liegen.

Bei der Analyse der in Abb. 2.10b dargestellten Messung einer weiteren Kalibrierungsprobe mit $C_{41} = 5 \times 10^{-11}$ wurde die Energiedifferenz bereits im $(\Delta E, E_T)$ -Scatterplot benutzt und das Fenster gleich auf die Calcium-Ereignisse mit richtiger Gesamtenergie gesetzt, welche nur aus $^{41}\text{Ca}^{20+}$ bestehen können. Deswegen sind in den Abbildungen 2.10d und f, denen Bedingungen analog zu den Abb. 2.10c und 2.10e zugrunde liegen, keine Reaktionsprodukte zu erkennen.

Die Belastung des Detektors hinsichtlich Zählrate erfolgt nicht durch Produkte aus Kernreaktionen, sondern durch gestreute Kalium-Ereignisse. Deren Zahl sollte in Abb. 2.10a und b annähernd gleich sein, da beide Proben aus demselben Ausgangsmaterial hergestellt wurden und das Produkt Meßzeit, ^{40}Ca -Strom und Transmission für beide fast gleich war. Die starke Reduktion der Zahl der Kalium-Ereignisse in Abb. 2.10b resultiert zum einen daraus, daß sich die Kalium-Ströme aus der Ionenquelle trotz gleichen Ausgangsmaterials um bis zu einer Größenordnung unterscheiden. Zum anderen gelangen die Kalium-Ereignisse durch Schlitzstreuung in den Detektor. Dieser Begriff umfasst z. B. das Durchfliegen mikroskopischer Unebenheiten an den Schlitzbacken, welches mit einem Energieverlust verbunden ist. Da dieser Prozeß von der Strahllage und Fokussierung abhängt, ist die Streuwahrscheinlichkeit nicht konstant. Aus verschiedenen Messungen ergab sich ein mittlerer Wert von 3×10^{-5} gestreuten ^{41}K -Ereignisse pro Ion am Eintritt des Magnetspektrographen.

Das Untergrund-Niveau U (Abschnitt 1.2) wird bei den UNILAC-Messungen vor allem durch die ^{41}Ca -Ereignisse aus Kernreaktionen bestimmt. In Abb. 2.10e entspricht 1 (richtiges) ^{41}Ca -Ereignis einer Konzentration $C_{41} \cong 5 \times 10^{-15}$ und könnte auch bei vielfach höheren Untergrund noch zweifelsfrei identifiziert werden. Eine Abschätzung des Untergrund-Niveaus liegt deshalb bei $U \leq 10^{-15}$. Dieser Untergrund läßt sich aber noch weiter reduzieren. Aufgrund der Reaktionskinematik liegt das Maximum der Winkelverteilung der Reaktionsprodukte in der Nähe des Grazing-Winkels, der im Fall von $^{12}\text{C}(^{41}\text{K}, ^{41}\text{Ca})^{12}\text{B}$ $1,7^\circ$ (im Laborsystem) beträgt. Diese Reaktionsprodukte wurden bei der in Abb. 2.10a dargestellten Messung vom Spektrometer auf die Fokalebene fokussiert und somit mitgemessen. Durch Beschneiden des akzeptierten Raumwinkels mit Schlitzen (Teil Nr.2, Abb. 2.5) wurde die Rate der ^{41}Ca -Ereignisse aus Kernreaktionen um mindestens zwei Größenordnungen gesenkt (Vergleich Abb. 2.10a mit 2.10b). Daraus läßt sich das Untergrund-Niveau zu $U \leq 10^{-17}$ abschätzen und liegt somit eine Größenordnung niedriger als der Wert von [Mid88a].

2.4 Transmission

2.4.1 Einstellung der Strahlführung

Die Transmission durch den UNILAC einschließlich des 180°-Strahlzweiges zum Magnetspektrometer muß zum einen bekannt sein, um die ^{41}Ca -Konzentration berechnen zu können (Gl. 1.3). Zum anderen sollte sie für das Erreichen einer niedrigen Empfindlichkeit möglichst hoch sein. Dazu muß die UNILAC-Transmission zunächst auf ^{41}Ca optimiert werden und dann in regelmäßigen Abständen, vor allem aber bei Ionenquellenwechsel, überprüft werden.

Für die Grundeinstellung auf ^{41}Ca werden Ionenströme benötigt, die auch am Ende der Strahlführung größer als 10 nA sind, damit diese von den standardmäßigen UNILAC-Diagnoseelementen erfaßt werden können. Zu diesem Zweck können sowohl ^{41}K -Ionen sowie ^{82}Kr -Ionen (mit der doppelten Ionenladung) verwendet werden, weil für die gesamte Strahlführung nur das Verhältnis A/q relevant ist. In der Regel wurde ^{82}Kr verwendet, weil es von der Ionenquelle her einfacher zu handhaben ist. Die geringen Unterschiede im A/q zwischen ^{82}Kr und ^{41}Ca (siehe Abschnitt 2.4.2) spielen hierbei keine Rolle, da nach der Grundeinstellung der Beschleuniger wegen Ionenquellenwechsel sowieso nachgestellt werden muß.

Problematischer ist die Nachregulierung mit einer Calcium-Probe in der Ionenquelle, deren ^{41}Ca -Gehalt gemessen werden soll. Aufgrund der Wahrscheinlichkeit für die Streuung eines ^{41}K -Iones in den Detektor von 3×10^{-5} (Abschnitt 2.3.2) und der maximalen Zählrate des Detektors von 500 Hz beträgt der maximale $^{41}\text{K}^{9+}$ -Strom am Eintritt des Magnetspektrographen 24 pA. Dies ist für Strommessungen mit den standardmäßigen UNILAC-Cups zu wenig. Aus diesem Grund wurde zur Nachregulierung ein Signal generiert aus der (ungestreuten) ^{41}K -Zählrate, gemessen mit dem Fokalebeneendetektor des Magnetspektrometers. Dazu war es erforderlich die Strahlintensität um mehrere Größenordnungen durch spezielle Gitter in der Strahlführung abzuschwächen. Dieses Signal erwies sich zur Nachregulierung als verwendbar, wenn auch mit Nachteilen. So ist eine Lokalisierung der Ursache von Instabilitäten oder Verlustquellen in der Strahlführung sehr zeitaufwendig und schwierig. Ein weiterer Nachteil war die Trägheit des Signales durch die zum Ausgleich statistischer Schwankungen notwendige Integrationszeit. Außerdem war keine Aussage über den Absolutwert der erreichten Transmission möglich, da weder die Abschwächer kalibrierbar noch der ^{41}K -Strom ($\approx 1\text{ nA}$) in der Injektion meßbar waren.

2.4.2 Messung der Transmission

In Abschnitt 1.2 wurden bereits die verschiedenen Möglichkeiten der Messung der Transmission diskutiert. Von diesen ist die Methode der Messung mit einem anderen Isotop z. B. ^{40}Ca am UNILAC nicht durchführbar, da ein Wechsel der Einstellung aller Fokussierungs- und HF-Komponenten zeitaufwendig und nicht reproduzierbar ist. Aus diesen Gründen wurde die Transmission für ^{41}Ca bisher aus Messungen mit Kalibrierungsproben bestimmt, deren ^{41}Ca -Konzentrationen aus der Neutronenaktivierung bekannt waren. Die mittlere Transmission $\bar{T}$, die die Vollstripp-Wahrscheinlichkeit und Detektoreffizienz beinhaltet, erhält man aus einer zu Gl. 1.3 analogen Gleichung

$$\bar{T} = \frac{N_{41}}{C_{41}} \times \frac{q \cdot e \cdot IS}{\bar{I}_t} . \quad (2.6)$$

Die Grundannahme bei derartigen Messungen ist, daß die Transmission konstant bleibt, wenn man ohne Änderung der Ionenoptik nur die Ionenquelle wechselt, d.h. von der Kalibrierungsprobe zur Meßprobe übergeht. Am UNILAC ist aber der zeitliche Unterschied zwischen diesen beiden Messungen groß (ca. 2 Stunden), bedingt durch den Zeitbedarf für den Ionenquellenwechsel und das Erreichen von stabilen Betriebsbedingungen. Außerdem hat das Emissionsverhalten der Ionenquelle einen großen Einfluß. Deswegen setzen Messungen mit diesem Verfahren eine gute zeitliche Konstanz der Transmission voraus, und zwar über Ionenquellenwechsel von Kalibrierungs- zur Meßprobe hinweg. Für AMS-Messungen sind solche Profile der Transmission gegenüber Abweichungen vom Sollwert günstig, die ein Plateau aufweisen (Abb. 2.11). Das Plateau sollte so breit sein, daß für das jeweilige Isotop, in diesem Fall ^{41}Ca , auch bei kleinen Abweichungen vom Sollwert eine konstante, maximale Transmission gewährleistet ist. Die Flanken dagegen sollten so steil sein, daß die Nachbarisotope nicht zum

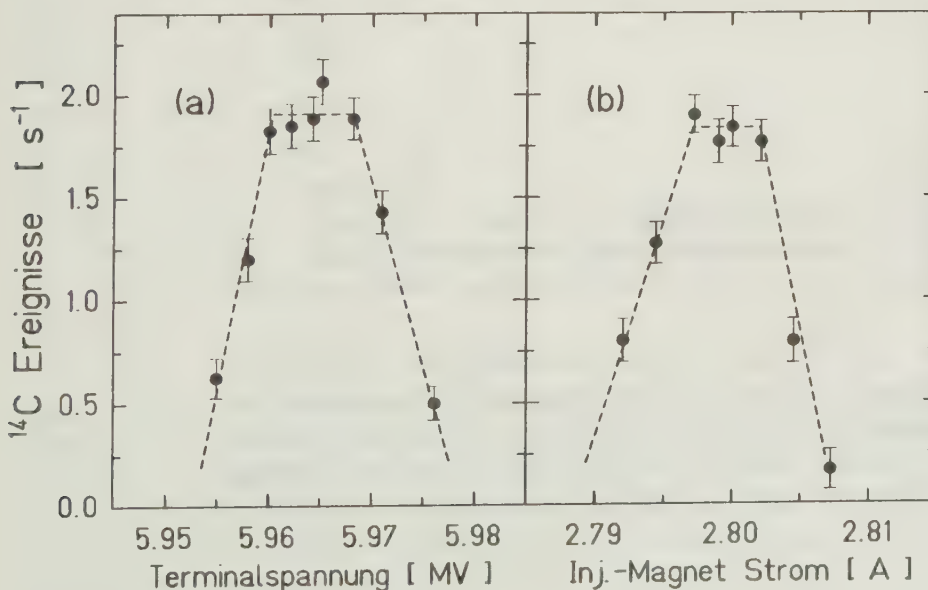


Abb 2.11 Mit ^{14}C gemessene Transmissionsprofile am FN Tandem in Argonne (USA). Diese Profile zeigen ein Transmission-Plateau, wie es für AMS-Experimente erwünscht ist. Die Werte wurden Fig.11 von [Hen81] entnommen. ("Inj.-Magnet" steht für Injektionsmagnet).

Detektor gelangen. Das entsprechende Transmissionsverhalten muß am UNILAC erst noch untersucht werden. Allerdings deuten der Umfang der Nachregulierung des UNILAC nach Ionenquellenwechsel und die trotzdem große Streuung der erreichten Transmissionen (Abb. 2.12) an, daß das Plateau (falls vorhanden) sehr schmal ist.

Die Reproduzierbarkeit von Transmissionswerten wurde mit ^{82}Kr -Ionen mit doppelter Ladung untersucht, und zwar durch Vergleich der Ströme in ausgesuchten Faraday-Cups. Die in Abb. 2.12 dargestellten Werte wurden in zwei Strahlzeiten gemessen, nach jeweilige Nachregulierung der Strahlführung, wobei das Signal zum Nachregulieren analog zur den Messungen ohne Pilotstrahl gebildet wurde. Die Variationen der erreichten Transmissionen geben somit die mit dieser Prozedur erreichbare Reproduzierbarkeit wieder. Deswegen wurde die Unsicherheit in der Transmission bei der ^{41}Ca -Messung zu einem Faktor 3 abgeschätzt, d.h. unmittelbar vorher gemessene Transmissionen wurden mit einem Fehler von $\begin{matrix} +200\% \\ -67\% \end{matrix}$ zur Berechnung der ^{41}Ca -Konzentration verwendet.

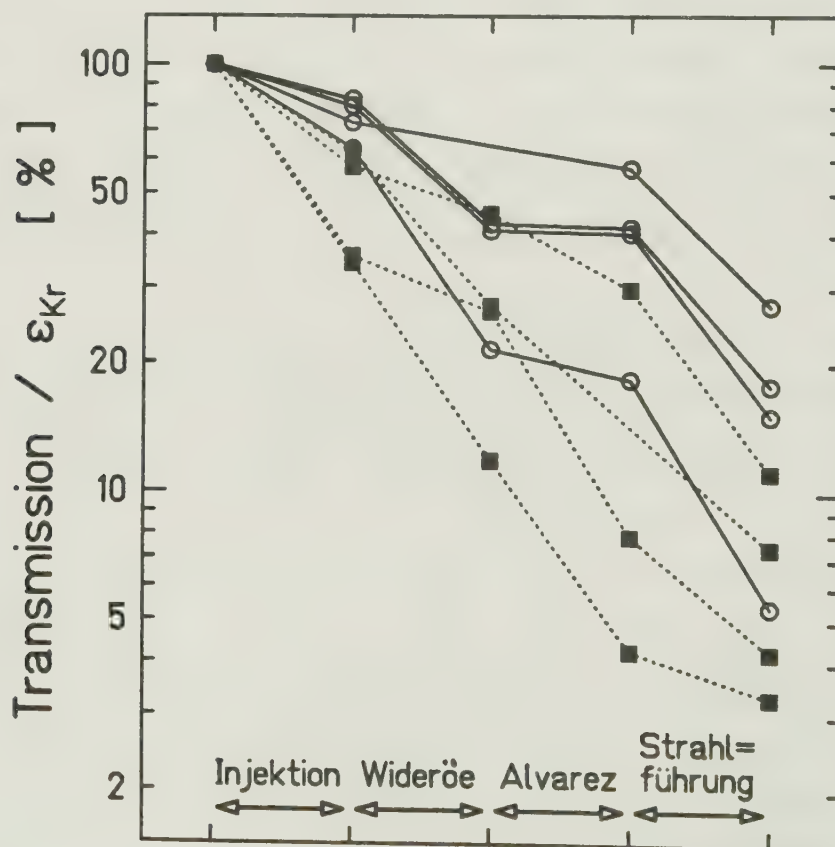


Abb. 2.12 Mit ^{82}Kr unter Strahlzeitbedingungen gemessene UNILAC-Transmission, dividiert durch die Krypton- Strippereffizienz im Gasstrippers $\epsilon_{\text{Kr}} = 5,6\%$. Die offenen Kreise stellen Ergebnisse der Strahlzeit vom August 1987 dar, die vollen Quadrate solche der Strahlzeit vom März 1988.

Um die Unsicherheit in der Transmissionsbestimmung zu verbessern, wurde die Einsatzmöglichkeit von Pilotstrahlen untersucht. Dadurch wird eine Verbesserung der Bestimmung der Transmission erwartet, weil diese dann ohne Ionenquellenwechsel und damit in kürzeren Zeitabständen erfolgen kann.

Der geeignetste Pilotstrahl in Bezug auf den Massendefekt ist ^{41}K mit einer Differenz zu ^{41}Ca von $\Delta(A/q) = 1.11 \times 10^{-5} A/q$. Wie bereits ausgeführt, ist der $^{41}\text{K}^{3+}$ -Strom in der Injektion wegen der Zählratenbeschränkung des Detektors am Magnetspektrographen auf $\sim 1 \text{ nA}$ begrenzt. Die Penning-Ionenquellen produzieren nun allerdings einen Untergrund von Ionen mit ähnlichem $A/q \simeq 41/3$ (Abb. 2.13). Da bei der in Abb. 2.13b dargestellten Messung das Feld des Ionenquellenmagneten konstant gehalten wurde, entsprechen die Isotopenverhältnisse nicht den natürlichen. Trotz einer Tantalverkleidung der Innenwände des Entladungsraumes und

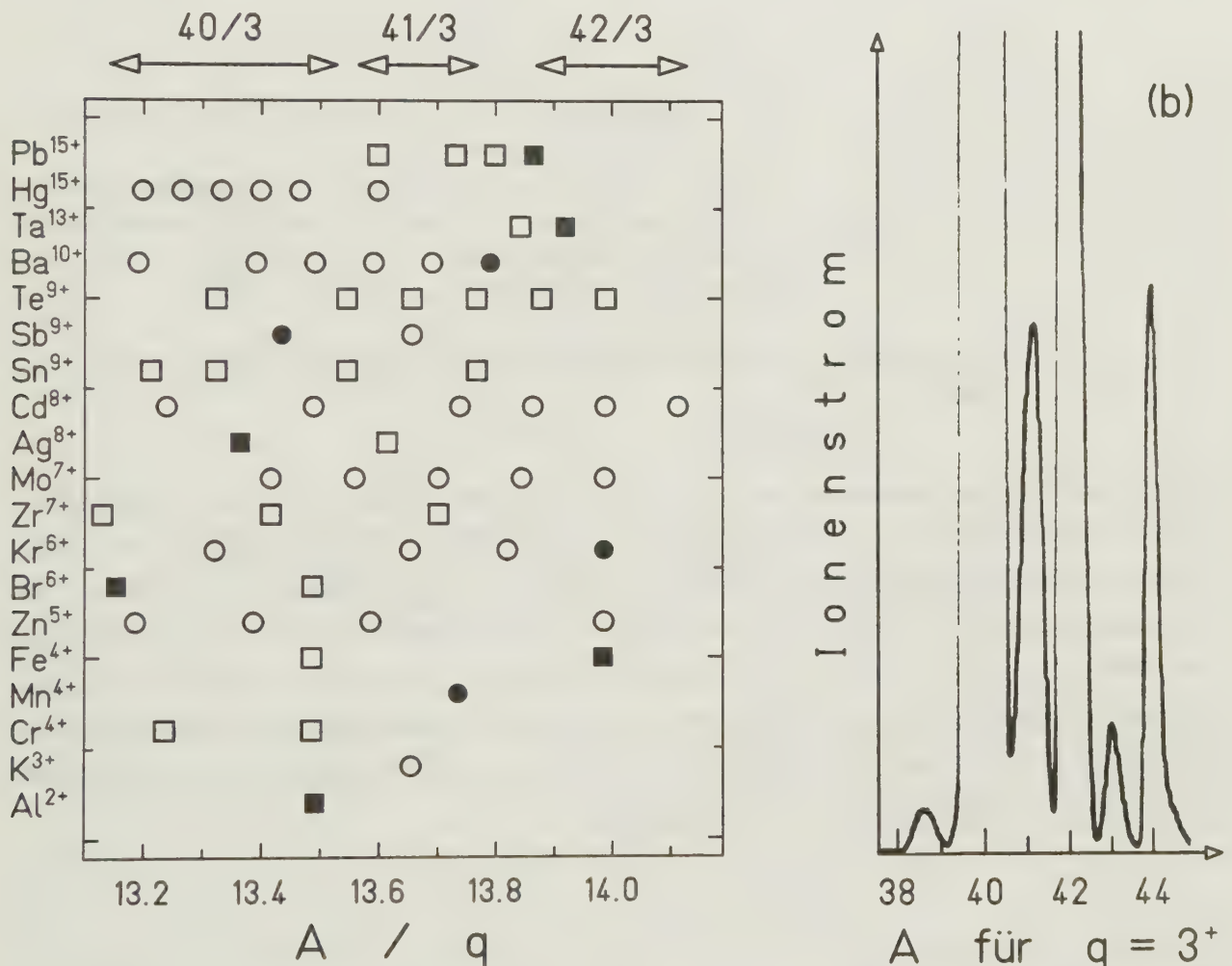


Abb. 2.13 Beispiele von Ionen mit einem Masse-zu-Ladungsverhältniss A/q ähnlich dem von $^{41}\text{Ca}^{3+}$. Die vollen Symbole zeigen Isotope mit mehr als 50 % relativer Häufigkeit. Die Pfeile am oberen Rand zeigen die Breiten der Peaks aus Abb. b auf halber Höhe des Peaks bei $A/q = 41/3$. Abb. b zeigt die Stromprofile bei einem Betrieb der Ionenquelle mit Calcium und Neon, gemessen hinter dem 77° -Dipolmagneten mittels Durchfahren von dessen Feld. Das Signal für die Abszisse wurde mit einer Hallsonde generiert und mit Positionen der Peaks mit $A/q = 40/3$ und $42/3$ kalibriert. Der Strom bei $A/q = 40/3$ bzw. $A/q = 41/3$ betrug $11,5 \mu\text{A}$ bzw. 7 nA , gemessen mit dem in Abschnitt 2.2 geschilderten Verfahren.

Vermeidung aller Molybdän-Teile wurde bei $A/q = 41/3$ ein Strompeak von 7 - 15 nA gemessen. Niedrige $^{39}\text{K}^{3+}$ und $^{83}\text{Kr}^{6+}$ -Ströme zeigten, daß dieser Peak weder aus $^{41}\text{K}^{3+}$ noch $^{82}\text{Kr}^{6+}$ bestehen konnte. Die Isotopenzuordnung dieses Peaks ist bisher ungeklärt.

Für einen ^{82}Kr -Pilotstrahl gilt im Prinzip die analoge Argumentation, nur läßt sich dieser - im Gegensatz zum ^{41}K -Strahl - mit Hilfe eines Ventils in der Gaszuleitung der Ionenquelle abstellen. Unter der Annahme, daß weder die Differenz im A/q aufgrund des Massendefektes $\Delta(A/q) = 1.35 \times 10^{-4}$ (A/q) noch der unterschiedliche Energieverlust im Gasstripper einen Einfluß auf die Transmission haben, erhält man die Transmission T für ^{41}Ca aus

$$T = \frac{I_T}{I_I} \frac{q_I}{q_T} \frac{\epsilon_{\text{Ca}}}{\epsilon_{\text{Kr}}} \frac{1}{F(q=Z) \times \eta} \quad (2.7)$$

mit	I_T	^{82}Kr -Strom vor dem Magnetspektrographen
	I_I	^{82}Kr -Strom in der Injektion
	q_T	^{82}Kr -Ladungszustand vor dem Magnetspektrographen (18^+)
	q_I	^{82}Kr -Ladungszustand in der Injektion (6^+)
	ϵ_{Kr}	Stripper-Ausbeute von Krypton-Ionen im Gasstripper (5.6%)
	ϵ_{Ca}	Stripper-Ausbeute von Calcium-Ionen im Gasstripper (26%)
	$F(q=Z)$	Vollstripp-Wahrscheinlichkeit von ^{41}Ca (69%)
	η	Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors (75%).

Die Zahlen in Klammern gelten unter den Bedingungen der letzten Strahlzeit (März 1988).

Durch eine Krypton-Beimischung von 5 % zu dem Entladungsgas Neon wurden genügend hohe $^{82}\text{Kr}^{6+}$ -Ströme (150 nA) erreicht. Das Abstellen dieses Pilotstrahles wurde durch Umschalten zu einer zweiten Gasflasche mit reinem Neon realisiert. Es zeigt sich allerdings, daß auch Stunden nach dem Abschalten noch zuviel Krypton (für den Fokalebenenendetektor) aus den Plastik- und Teflonteilen der Gaszufuhr der Ionenquelle diffundierte. Durch Austausch dieser Teile gegen metallische wurde die Ausspülzeit des Krypton auf 15 Minuten reduziert. Wegen weiterer technischer Probleme kann ein Einfluß des Massendefektes auf die Transmission noch nicht mit hinreichender Genauigkeit ausgeschlossen werden.

2.4.3 Verbesserungsmöglichkeiten

Auch wenn sich ^{82}Kr als Pilotstrahl verwendbar erweist, hat das im letzten Abschnitt geschilderte Verfahren zwei Nachteile. Zum einen entsteht ein Zeitverlust dadurch, daß das Krypton aus der Ionenquelle gespült werden muß, und zum anderen kann die Transmission nur abwech-

selnd, nicht gleichzeitig mit der ^{41}Ca -Messung bestimmt werden. Hierzu folgen zwei (unabhängige) Verbesserungsvorschläge, die aber bislang nicht in der Praxis getestet worden sind.

Der erste Vorschlag betrifft die Wahl des Ladungszustandes 11^+ anstelle des bisher verwendeten 9^+ von ^{41}Ca nach dem Gasstripper. Hierdurch würde die Calcium-Stripperausbeute (Abb. 2.3) nicht wesentlich reduziert werden, wohl aber die von Krypton (Abb. 2.14). Auf diese Weise sind höhere $^{82}\text{Kr}^{6+}$ -Ströme in der Injektion bei gleichem Strom am Eintritt der Magnetspektrographen möglich.

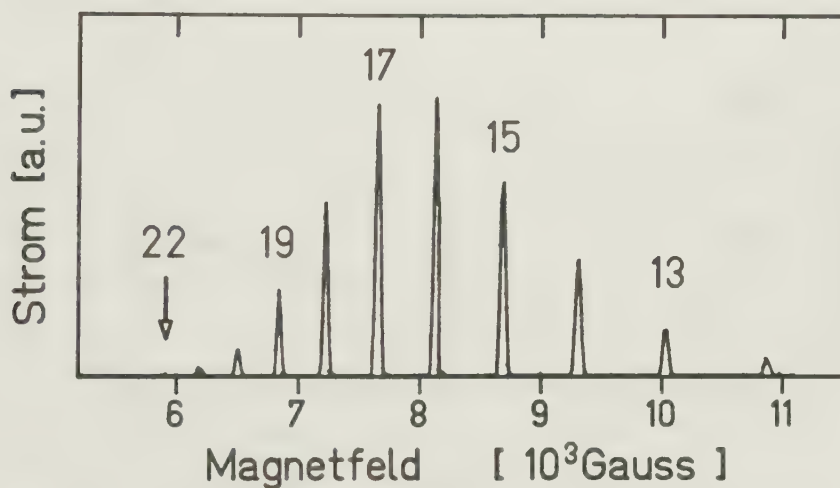


Abb 2.14 Gemessene Ladungsverteilung von $^{82}\text{Kr}^{6+}$ mit 1,4 MeV/u am Gasstripper mit 850 Torr N_2 . Der Strom ist in willkürlichen Einheiten [a.u.]. Die Ladungszustände sind durch Ziffern gekennzeichnet, die Position des 22^+ - Ladungszustandes ist durch den Pfeil angedeutet.

Die zweite Verbesserungsmöglichkeit basiert auf der Verwendung einer Absorberfolie vor dem offenen Bereich des Detektors, dick genug um die ^{82}Kr -Ionen zu stoppen, aber so dünn, daß die ^{41}Ca -Ionen durchfliegen. Aufgrund der $B\rho$ -Analyse durch das Magnetspektrometer haben die ^{82}Kr -Ionen, die in den Detektor gelangen, eine Maximalenergie (d.h. bei maximalem $q=36^+$) von nur 11,58 MeV/u. Für den mittleren Ladungszustand $\bar{q} = 34^+$ liegt die Energie sogar bei nur 10,3 MeV/u. Dadurch haben diese Krypton-Ionen eine geringere Reichweite als die ^{41}Ca -Ionen mit 14,3 MeV/u (Abb. 2.15). Für diese Abbildung wurden die Energieverlustwerte von [Nor70] verwendet. Diese geben zwar im Mittel um ca 15 % zu geringe Werte an [Gei82], aber hier kommt es zum einen mehr auf die relative Z - und Energieabhängigkeit an und zum anderen sind die genaueren Daten von [Hüb80] erst ab Energien von 2,5 MeV/u verfügbar. Die Reichweite der ^{82}Kr -Ionen nach [Hüb80] beträgt 21,4 mg/cm². Bei dieser Dicke beträgt die ^{41}Ca -Rüstenergie 6,35 MeV/u, also 260 MeV und ist somit noch genügend weit über dem

bei 33 MeV liegendem Bragg-Maximum. Die tatsächliche Dicke des Absorbers sollte wegen des Reichweitestraggelings etwas höher liegen.

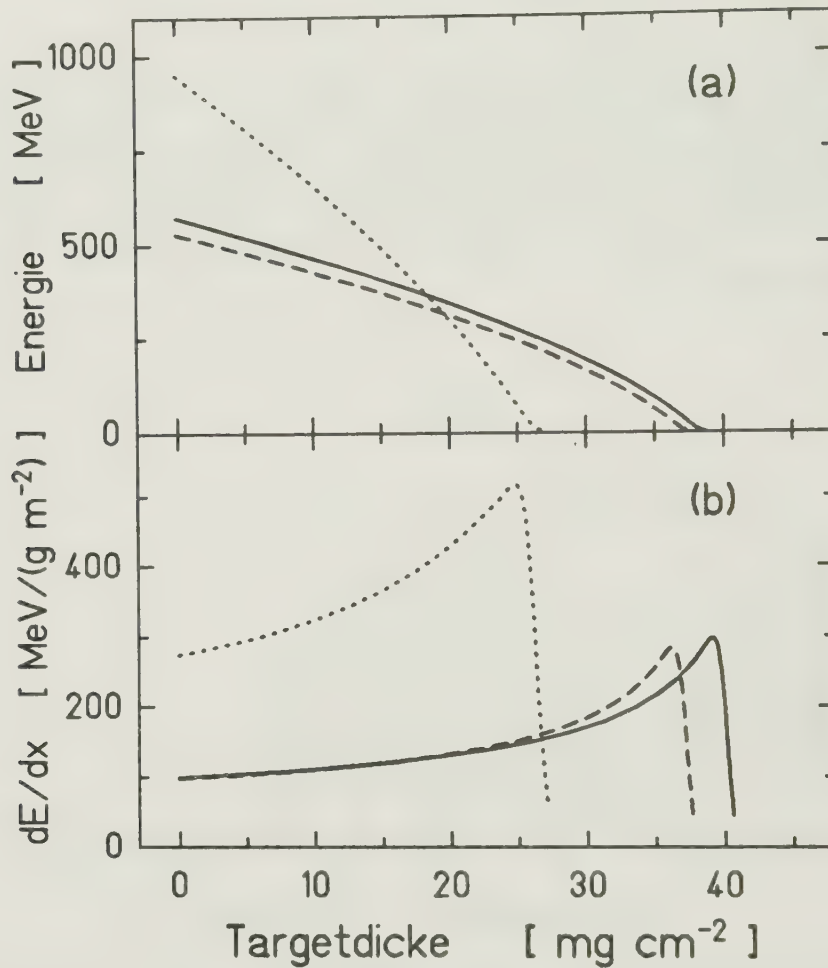


Abb. 2.15 Ionenenergie (Abb. a) bzw. Energieverlust (Abb. b) als Funktion der durchdrungenen Flächenbelegungen für ^{41}Ca mit 14,3 MeV/u (durchgezogene Linie), ^{41}K mit 12,9 MeV/u (gestrichelte Linie) und ^{82}Kr mit 11,6 MeV/u Eintrittsenergie in Kohlenstoff nach [Nor70].

Bei einem derart dicken Absorber dürfen Energieverlust-Straggeling δE und Winkelstraggeling $\delta\alpha$, die zu Energieunschärfe und Winkelaufweitung des Strahles führen, nicht vernachlässigt werden. Diese Effekte könnten die ^{41}Ca -Identifikation gefährden und werden im folgenden abgeschätzt.

Das Energieverlust-Straggeling δE für ^{41}Ca nach Durchgang durch eine 22 mg/cm^2 dicke Kohlenstoff-Folie beträgt bei Berechnung nach [Bic72] $\delta E = 2,3 \text{ MeV}$ (FWHM), bei Berechnung nach der Firsov-Hvelplund-Formel aber $\delta E = 10,0 \text{ MeV}$ (FWHM). Für den letztgenannten Wert wurde Gleichung (5) von [Gei83] für kleine Teilstücke des Absorbers angewandt und deren Energieverluststraggeling quadratisch addiert. Eine zusätzliche Energieunschärfe wird durch kleine Inhomogenitäten im Absorber bewirkt, da der gesamte Energieverlust sehr groß ist

($\simeq 350$ MeV). Bei Verwendung eines Absorbers aus mehreren Folien, z. B. aus Polyäthylen, sollte dieser Anteil auf Werte deutlich unter 10 MeV beschränkt werden können. Da aber auch dieser niedrige Wert des Energiestraggelings noch 4% der Restenergie entspricht, erfordert die ^{41}Ca -Identifikation unter diesen Umständen ein enges Setzen des Fensters. Unterstützt wird die Trennung von z. B. ^{42}Ca durch dessen grösseren Energieverlust in dem Absorber.

Das Winkelstraggeling beträgt, abgeschätzt nach [Par84], $\delta\alpha = 0,42 \text{ rad} = 24^\circ$ (FWHM). Bei Positionierung der Folie 30 mm vor dem Proportionalzählrohr, das die horizontale Position bestimmt, bewirkt dies eine Strahlaufweitung um 13 mm. Das bedeutet bei maximaler Dispersion von 7 cm/% eine Unschärfe von $\delta B\rho/B\rho$ von 0,2%. Dies ist zum einen klein gegenüber der $B\rho$ -Differenz $\Delta B\rho/B\rho = 1,2\%$ zwischen den ^{41}Ca -Ereignissen aus Kernreaktionen und primären ^{41}Ca -Ereignissen, zum anderen könnte dieser Effekt durch eine Winkelbestimmung mit dem zweiten Proportionalzählrohr des Fokalebenendetektors (Abb. 2.6) noch reduziert werden.

Der Einsatz einer Absorberfolie zur Krypton-Absorption erscheint daher durchaus erfolgversprechend. Sollte sich nur einer der beiden Vorschläge realisieren lassen, dann würde zumindest das Umschalten der Ionenquelle zwischen Betrieb mit und ohne Krypton entfallen. Falls sich aber beide Vorschläge in die Praxis umsetzen lassen, müßte auch eine simultane Messung der Transmission möglich sein, und zwar durch Strommessung in der Injektion mit einem Strahltransformator [Loy85] und am Magnetspektrometer mit einem Faraday-Cup in der Fokalebene bei z. B. $^{82}\text{Kr}^{33+}$. Dann würde auch die Optimierung der Transmission zumindestens im Prestripper-Bereich einfacher, da dort auch die radialen Ausläufer der Ionenstrahlverteilungen mit Hilfe der Profilgitter erfasst werden könnten. Der Einsatz der Profilgitter bei der Nachregulierung erlaubt es auch - im Gegensatz zur Verwendung des Detektorsignals vom Magnetspektrometer - die Orte von Strahlverlusten einfach zu lokalisieren. Das Optimieren auf die längs des UNILAC verteilten Faraday-Cups bewirkt die Einstellung von Fokussen an den Cup-Positionen, an denen aber bei idealer Ionenoptik im allgemeinen keine sind. Dies würde beim Einsatz der Profilgitter ebenfalls vermeidbar sein.

2.5 Ergebnisse und Diskussion

Die Messung natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen wurde bei drei Proben aus Rehknochen (#4, #16 und #21) versucht. Die Rehe wurden im Odenwald in den Jahren vor 1963, 1987 und vor 1950 erlegt. Bei den Proben #4 und #21 resultieren die Mindestalter daraus, daß der jeweilige Förster zu dieser Zeit seine Tätigkeit einstellte. Das Calcium wurde aus den Knochen mit dem in Abschnitt 3.4.2 erläuterten Verfahren extrahiert und in metallische Form übergeführt [Mai87]. In diese Messungen wurde allerdings nicht viel Strahlzeit investiert, da die Transmission nicht genau bestimmt werden konnte. Die Entwicklung der Methode und Tests von instrumentellen Verbesserungen hatten deshalb Vorrang. Dies betrifft vor allem den Zeitaufwand zum Erreichen hoher Transmissionen. Unter diesen Umständen wurde bei zwei Proben kein ^{41}Ca -Ereignis und bei der dritten Probe nur eines beobachtet (Tabelle 2.1). Die Transmissionen wurden jeweils unmittelbar vorher mit Kalibrierungsproben gemessen. Zur Berechnung der Obergrenzen der ^{41}Ca -Konzentration erfolgte nach Gleichung 1.3, indem statt der Zahl der Ereignisse der Wert $(N + \Delta N)$ und statt der Transmission der Wert $(T - \Delta T)$ eingesetzt wurde. Für den statistischen Fehler der Zählrate bei keinem Ereignis wurde $\Delta N = 1,84$ eingesetzt, was einer statistischen Sicherheit (confidence level) von 84 % entspricht [Sch84]. ΔT betrug -67 % (Abschnitt 2.4.2). Im Fall der Probe #16 mit $N = 1$ wurden die Fehlergrenzen aus analog berechneten Ober- und Untergrenzen ermittelt ($\Delta N = {}^{+2,3}_{-0,83}$ und $\Delta T = {}^{-67}_{+200} \%$). Ein Vergleich mit den anderen bislang gemessenen ^{41}Ca -Konzentrationen C_{41} in Knochen ist in Abschnitt 4.3 (Abb. 4.7) zu finden.

Tabelle 2.1 : Messwerte natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen (siehe Text).

Probe	$^{40}\text{Ca}^{3+}$ - Strom [μA]	Meßzeit [min]	^{41}Ca - Ereignisse	Trans- mission [%]	$C_{41} \times 10^{15}$
#4	85	82	0	0.072	$\leq 8,5$
#16	36	76	1	0.057	$5,0 {}^{+44}_{-4,7}$
#21	12	133	0	0.39	$\leq 6,9$

Die jeweils erreichten Empfindlichkeiten S (Gl. 1.4) lassen sich aus den Messungen der Kalibrierungsproben mit bekannten ^{41}Ca -Konzentrationen ermitteln durch:

$$S = \frac{C_{41}}{N_{41}} \times \frac{t}{3600 \text{ s}} \quad (2.8)$$

Die Empfindlichkeiten, die mit der gegenwärtigen Konfiguration möglich sein sollten (Tabelle 2.2), wurde mit Gl. 1.4 berechnet. Der hierzu verwendete Wert für die Transmission von 2,7% entspricht einer ^{82}Kr -Transmission von $(20\% \times \epsilon_{\text{Kr}})$ (Abb. 2.12), umgerechnet nach Gl. 2.7.

Tabelle 2.2 : Empfindlichkeiten für ^{41}Ca am UNILAC. Die Empfindlichkeiten bzw. Transmissionen wurden mit den den Kalibrierungsproben gemessen, die erreichbare Transmission aus den Messungen mit ^{82}Kr abgeleitet (siehe Text).

	$^{40}\text{Ca}^{3+}$ - Strom [μA]	Trans- mission [%]	Empfindlich- keit S
bisher erreicht	54	0.077	$3,1 \times 10^{-15}$
	75	0.067	$2,6 \times 10^{-15}$
	4	0.057	$1,2 \times 10^{-13}$
	11,5	0.39	$3,0 \times 10^{-15}$
erreichbar	100	2,7	$9,6 \times 10^{-17}$

Die große Differenz zwischen den erreichten und der erreichbaren Empfindlichkeit (Tabelle 2.2), resultiert vor allem aus den niedrigen Transmissionen. Dies unterstreicht die Wichtigkeit von besseren Signalen zum Einstellen von UNILAC und Strahlführung, die mit den in Abschnitt 2.4.4 erläuterten Vorschlägen erreicht werden sollen. Die teilweise auch niedrigen Ströme sind auf Oxidation der Sputterelektroden zurückzuführen und somit vergleichsweise einfach zu verbessern. Durch einen Wechsel des Ionenquellentypes sollte eine weitere Steigerung der Empfindlichkeit möglich sein. Für positive Ionen gibt es eine ganze Reihe von Ionenquellentypes, die höheren Strom liefern sollten, speziell wenn man sich auf zweifach-geladene Calcium-Ionen beschränkt. Z. B. wurde mit einer Bernas-Nier-Ionenquelle (Kap.3), die im allgemeinen nicht zu den Hochstromquellen zählt, ohne intensive Parameteruntersuchung $1200 \mu\text{A Ca}^{2+}$ im Dauerstrichbetrieb erreicht.

Die Frage, inwieweit es sinnvoll ist, noch niedrigere Empfindlichkeiten zu erzielen, hängt stark von den Proben bzw. deren ^{41}Ca -Konzentrationen ab. Für die Untersuchung zeitgenössischer ^{41}Ca -Konzentrationen, die im Bereich von 10^{-13} bis 10^{-15} liegen (Abb. 4.7, Abschnitt 4.3), ist eine Empfindlichkeit von 10^{-16} ausreichend, da eine weitere Reduzierung sich nur geringfügig auf die Meßzeit auswirken würde, weil der Zeitaufwand für Ionenquellenwechsel, Einstellung der Strahlführung usw. konstant bleibt. Dies ändert sich aber, wenn man die ^{41}Ca -Konzentration sehr alter Calcium-Proben oder von tiefer gelegenen Gesteinen bestimmen wollte (Kap. 5).

Über den Status der ^{41}Ca -AMS am UNILAC läßt sich zusammenfassend sagen, daß die ^{41}Ca -Ereignisse frei von Untergrund eindeutig identifiziert werden können. Die Abschätzung des Untergrund-Niveaus ergab $U \leq 10^{-17}$. Zur Zeit bestehen noch Probleme mit Einstellung und Messung der UNILAC-Transmission. Falls diese Probleme gelöst werden, wozu eine Reihe von Vorschlägen beschrieben wurden, ist die dann erreichbare Empfindlichkeit $S = 10^{-16}$ niedrig genug zur Messung zeitgenössischer, natürlicher ^{41}Ca -Konzentrationen.

3. Anreicherung von ^{41}Ca

Im Gegensatz zur ^{41}Ca -AMS am UNILAC ist bei der ^{41}Ca -AMS an vielen Tandem-Beschleunigern nicht die Bestimmung der Transmission das Problem, sondern die hohe Nachweisgrenze (Tabelle 1.2). Aus diesem Grund konnten an diesen Beschleunigern bisher keine bzw. nicht genügend ^{41}Ca -Ereignisse beobachtet werden. Deshalb wurde z. B. von [Rai81b] vorgeschlagen, die ^{41}Ca -Konzentration der Proben durch elektromagnetische Anreicherung um definierte Faktoren zu erhöhen und somit die nachfolgende AMS-Messung zu ermöglichen. Die im folgenden dargestellte Methode zur Anreicherung wurde am Mittelstromseparator der GSI ([Nic87], Abb. 3.1) entwickelt und für einige Proben angewendet.

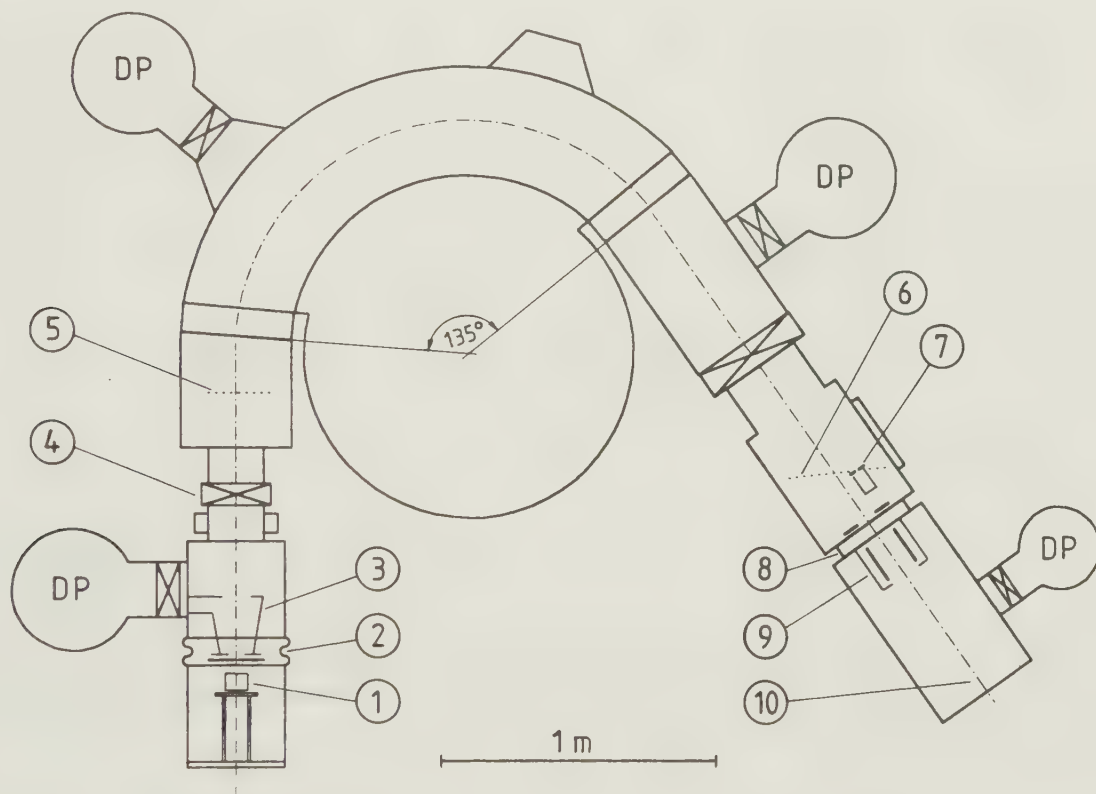


Abb. 3.1 Schematische Ansicht des bei der GSI betriebenen Mittelstrom-Massenseparators. Die Komponenten sind 1) Ionenquelle, 2) Isolator zwischen Ionenquellen- und Erdpotential, 3) Extraktion, 4) Ventil, 5) Profilgitter, 6) Fokalebene, 7) verfahrbare Aufsammlertasche. Die Komponenten 8-10 bilden einen Faraday-Cup mit 8) Isolator, 9) Sperrelektrode für Elektronen, 10) Strahlstopper. Das Vakuum wurde durch die mit "DP" bezeichneten Öldiffusionspumpen erzeugt.

Abb 3.2 zeigt das Zusammenwirken der verschiedenen Komponenten des Massenseparators mit den wesentlichen Aussagen :

- Der Einfluß des Analysiermagneten beschränkt sich in diesem Zusammenhang auf Vorgabe der ionenoptischen Akzeptanz, d.h. von Obergrenzen für Höhe, Breite und Divergenz des Ionenstrahles.
- Die Extraktionsparameter, d.h. das Ionenquellenpotential U_{HV} und der Abstand des Meniskus (Plasmagrenze) zur Extraktionselektrode wirken nicht direkt auf die Stromdichte und Strahldivergenz, sondern nur gemeinsam über die Krümmung der Plasmagrenze.
- Die Plasmaparameter, die durch die Betriebsparameter wie Bogen Spannung U_A oder durch die Partialdrücke in der Bogenkammer eingestellt werden, haben nur über die Stromdichte einen Einfluß auf die Divergenz.

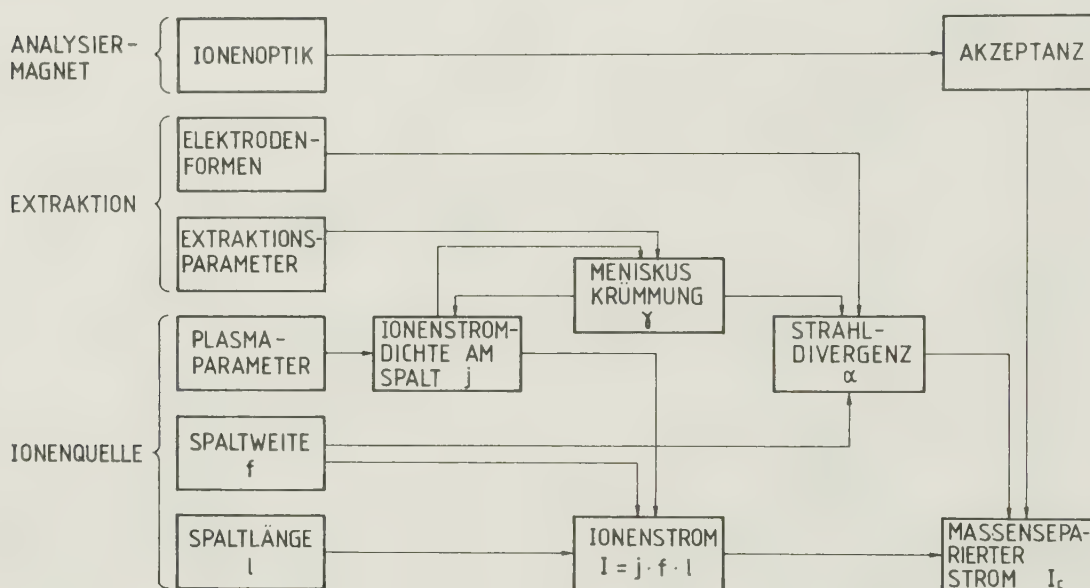


Abb. 3.2 Schematische Zusammenhänge der zur Erzeugung des massenseparierten Stromes wichtigen Parameter, gültig für Plasmaionenquellen [Cha70]. Nicht explizit berücksichtigt ist hierbei das Massenauflösungsvermögen.

Aus diesen Gründen wird im folgenden zuerst auf die Extraktion von Ionenströmen eingegangen (Abschnitt 3.1) und dann auf den Analysierungsmagneten (Abschnitt 3.2), dessen Akzeptanz die maximale Divergenz einschränkt. Im Anschluß daran wird die Ionenquelle vorgestellt (Abschnitte 3.3), die dann nicht für sich genommen, sondern in das Gesamtsystem eingebunden dargestellt wird. Am Ende des Kapitels folgt die Schilderung der Konzeption der Anreicherung und deren Durchführung an den Proben (Abschnitt 3.4).

3.1 Extraktion

Die Aufgaben der Extraktion sind:

- Steuerung der Divergenz des Ionenstrahles, durch Variation des Abstandes zwischen Extraktionselektrode und Ionenquelle,
- Strahljustierung, durch Verschiebung und Drehung der Extraktionselektrode [Cam70],
- Abschirmung des positiven Ionenquellenpotentials durch die negative Vorspannung. Ohne diese Elektronensperre würde die Neutralisierung der Raumladung des Strahles durch Elektronen aus Ion-Restgasstößen zerstört.

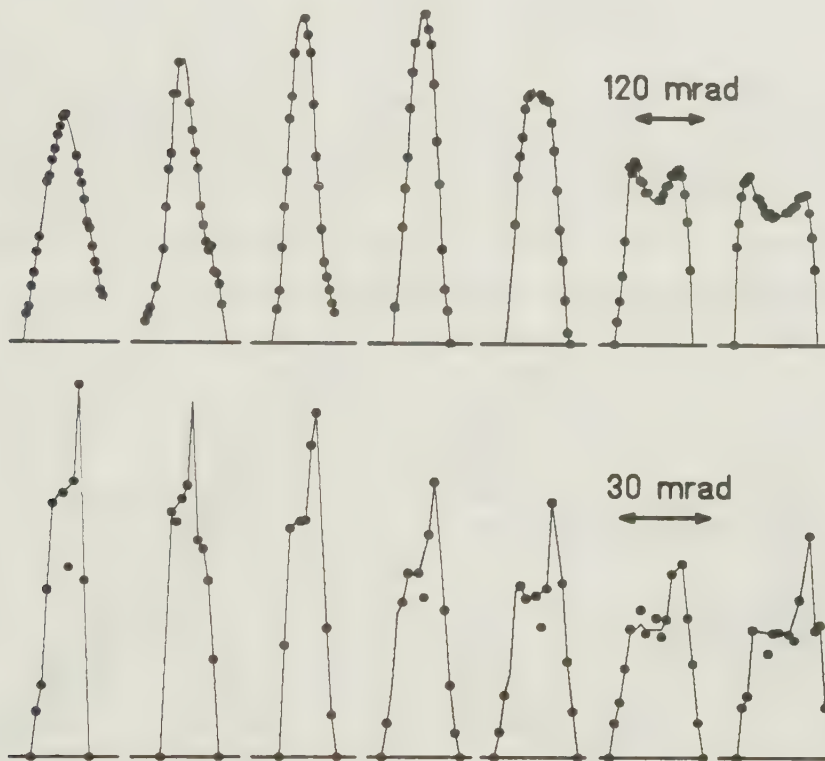


Abb. 3.3 Horizontale (oben) und zugehörige vertikale Ionenstromprofile (unten). Die Punkte sind die mit den Profilgittern gemessenen Werte (flächennormiert). Die dargestellten Profile wurden durch Variation eines Kr^+ -Ionenstromes von 1,24 mA (links) bis 3,85 mA (rechts) erhalten, wobei U_{HV} und d konstant gehalten wurden. Die Extraktionselektrode war in vertikaler Richtung leicht gekrümmt ($R_z = 600$ mm), um den Strahl geringfügig zu fokussieren. Die Spitzen bei den vertikalen Profilen resultieren zum Teil aus elektronischen Defekten der Stromauslese.

Die horizontalen und vertikalen Profile variieren in Abhängigkeit von den Extraktionsbedingungen. Es ergeben sich ähnliche Profile (Abb. 3.3) bei steigendem Ionenstrom I [mA], sinkender Beschleunigungsspannung U_{HV} [kV] oder wechselndem Abstand d zwischen Ionenquelle und Extraktionselektrode (Definition von d siehe Abb. 3.4). Der Meniskus

verändert sich von konkav (z. B. bei kleinem I) über plan nach konvex. Da somit nur eine Steuermöglichkeit besteht und die vertikale Divergenz weniger kritisch ist, wird im folgenden nur die horizontale Divergenz betrachtet. Der Abstand $d = d_0$ [mm], bei dem der Meniskus plan ist, ist gegeben durch

$$d_0^2 = \frac{5.45 \times 10^{-5} U_{HV}^{3/2}}{\sqrt{A}} \times \left(\frac{I}{f h} \right)^{-1}, \quad (3.1)$$

wobei A die atomare Masse der Ionen, f [mm] die Schlitzweite (Abb. 3.4) und h [mm] die Schlitzhöhe ist. Für divergente Strahlen (d.h. mit konvexem Meniskus) einfach positiv geladener Ionen ist die in Abb. 3.5 definierte Strahldivergenz α (in rad) nach [Cha78]

$$\alpha = f \left(\frac{a}{d_0^2} \frac{d}{d} - \frac{b}{d} \right). \quad (3.2)$$

a und b sind Konstanten, die von der Geometrie der Elektrodenformen abhängen. Die Gültigkeit von Gleichung (3.2) wurde von [Cha78] nur für einen kleinen vertikalen Ausschnitt aus dem Strahl mit konstanter Strahlintensität untersucht. In der Praxis sind die vertikalen Profile jedoch keineswegs konstant (Abb. 3.3). Die Anwendbarkeit von Gleichung 3.2 wurde deshalb in dieser Arbeit ohne Begrenzung des Strahles untersucht.

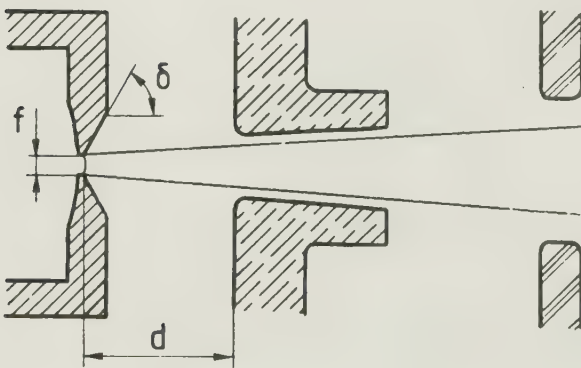


Abb. 3.4 Definition des Extraktionsparameters d . Der Winkel δ ist einer der geometrischen Faktoren, die die Konstanten a und b in Gleichung 3.2 beeinflussen und betrug während der Anreicherung 30° .

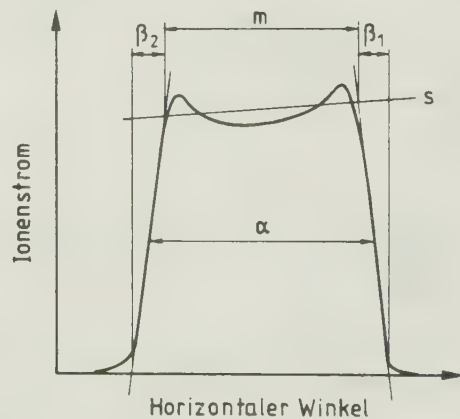


Abb. 3.5 Zur Ermittlung der Divergenz nach [Cha78] werden die Flanken geradlinig verlängert und die Linie s so eingezeichnet, daß die Flächen zwischen s und der Kurve auf beiden Seiten von s gleich sind. Aus den Schnittpunkten von s mit den Seitengeraden erhält man die Strecke m , aus diesen und den Schnittpunkten der Seitengeraden mit der Grundlinie β_1 und β_2 . Hieraus berechnet sich die Divergenz nach $\alpha = m + (\beta_1 + \beta_2) / 2$.

Die Divergenzprofile wurden hierzu mit dem Profilgitter in 1100 mm Abstand von der Ionenquelle (Abb. 3.1) gemessen und der Strom I berechnet nach

$$I = I_{HV} - I_{Ex} - (I_{HV}^0 - I_{Ex}^0) \quad (3.3)$$

mit I_{HV} Belastungsstrom der Hochspannung,
 I_{Ex} Strom der negativen Extraktionselektrode,
 I_{HV}^0 Offset von I_{HV} (ohne Strahl),
 I_{Ex}^0 Offset von I_{Ex} (ohne Strahl).

Der Extraktionsstrom I_{Ex} wird in Gleichung (3.3) subtrahiert, weil er zum großen Teil aus Sekundärelektronen besteht, die von auftreffenden Ionen aus der Extraktionselektrode herausgeschlagen werden. Durchgeführt wurde diese Untersuchung mit Krypton-Strahlen unter Ionenquellenbedingungen, bei denen der Anteil von Kr^{2+} vernachlässigbar ist. Es zeigt sich, daß bei konstantem d die Divergenz α linear von d_0^{-2} abhängt (Abb. 3.6), wie nach Gleichung (3.2) zu erwarten ist, daß sich allerdings für verschiedene Werte von d keine gemeinsamen Werte für a und b ergeben (Abb. 3.7).

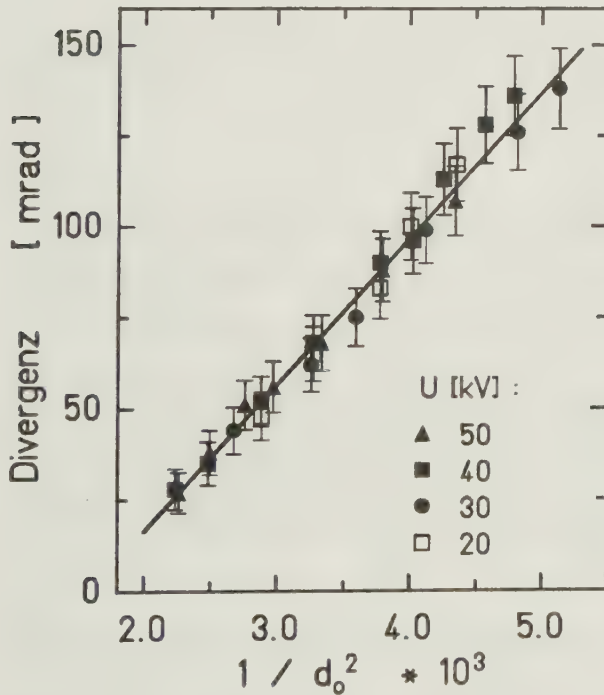


Abb. 3.6 Messung der Divergenz eines Krypton-Strahles, für die angegebenen Spannungen U_{HV} bei konstantem Abstand $d=42,5$ mm. Die Abszissenwerte sind nach Gleichung 3.1 berechnet und proportional zu $U_{HV}^{-3/2} \times I$.

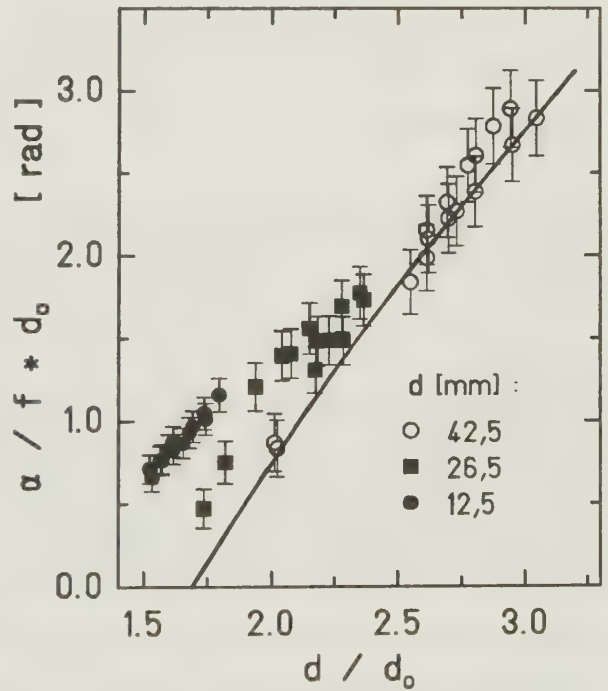


Abb. 3.7 Messung der Divergenz für verschiedene Abstände d und verschiedene Spannungen U_{HV} . Die Kurve entspricht der gefitteten Geraden in Abb. 3.6. Die Meßpunkte für $d = 42,5$ mm wurden zur besseren Übersicht teilweise weggelassen.

3.2 Analysiermagnet

Der Analysiermagnet vom Typ "Sidonie" ([Cam70], [Ale70] und dort angegebene Referenzen) ist ein C-Magnet mit einem mittleren Ionenbahnradius von 850 mm und einem Ablenkwinkel von 135° . Das magnetische Feld ist inhomogen mit einem Feldindex $n \simeq 0,5$, woraus eine Dispersion von 1915 mm $\Delta A/A$ und ein Fokalebenen-Abstand zwischen ^{40}Ca und ^{41}Ca von 48 mm resultiert. Zur Optimierung der Fokussierung kann der Feldindex (und damit die Fokallänge) mit einer zusätzlichen Korrekturspule im Bereich von $\pm 10\%$ variiert werden [Cam81a], wobei aber auch die Dispersion beeinflusst wird.

Die Massentrennung läßt sich in Hinblick auf die Anreicherung von ^{41}Ca durch 3 in der Fokalebene zu messende Größen charakterisieren: Linienbreite, Linienausläufer der Nachbarisotope und gleichzeitige Fokussierung mehrerer Isotope.

Da bei der Anreicherung nahezu vollständiges Aufsammeln einer Masse wichtig ist, ist die Linienbreite $W_{0,1}$ (volle Breite bei 1/10 Maximum) ein geeigneter Parameter der Linienbreite, denn im allgemeinen enthält $W_{0,1}$ ca. 90 % der gesamten Intensität. An dem GSI-Mittelstromseparator wurde für Ströme im mA-Bereich Breiten bis zu $W_{0,1} = 2,5$ mm (mit Kr^+) gemessen. Dies ist aber nicht der kleinste, für Analysiermagneten diesen Typs erreichbare Wert, wie Messungen am $^{40}\text{Ar}^{1+}$ mit $W_{0,1} = 1,1$ mm unter Verwendung einer anderen Ionenquelle und Extraktion zeigten [Meu70].

Die zweite Größe, die die Anreicherung bestimmt, ist gegeben durch die Ausläufer der Nachbarisotope am Ort des aufzusammelnden Isotops in der Fokalebene. Neben der Größe der Taschenöffnung (abhängig von $W_{0,1}$) bestimmen diese Ausläufer die Verunreinigung der aufgesammelten Probe mit Nachbarisotopen. (Schwere Isotope werden allerdings zusätzlich bei Hochspannungsüberschlägen mit aufgesammelt [Sal81]). Die Linienausläufer kommen zustande durch elastische Streuung mit dem Restgas, durch Erzeugung von Neutralteilchen bei inelastischen Stößen im Bereich des Magnetaustrittes und durch Umladungsprozesse im Extraktionsbereich (chromatische Ionen) [Cam81b].

Bei der Anreicherung von ^{41}Ca ist das parallele Aufsammeln mehrerer Isotope wichtig. Dies erfordert eine gleichzeitig gute Fokussierung mehrerer Massen, die nicht einfach realisierbar ist. Bei der Messung in Abb. 3.8 wurde z.B. die Fokussierung des $^{82}\text{Kr}^{2+}$ -Peaks optimiert, weswegen die des $^{40}\text{Ca}^+$ -Peaks schlechter ist. Für dieses Verhalten gibt es zwei Erklärungen. Einerseits besteht sicher eine Störung aufgrund nicht vollständig kompensierter Raumladung, d.h. die Fokussierung ist stromabhängig. Andererseits bilden die Orte der Bildpunkte nur in erster Ordnung eine Ebene, die sogenannte Fokalebene [Cha84].

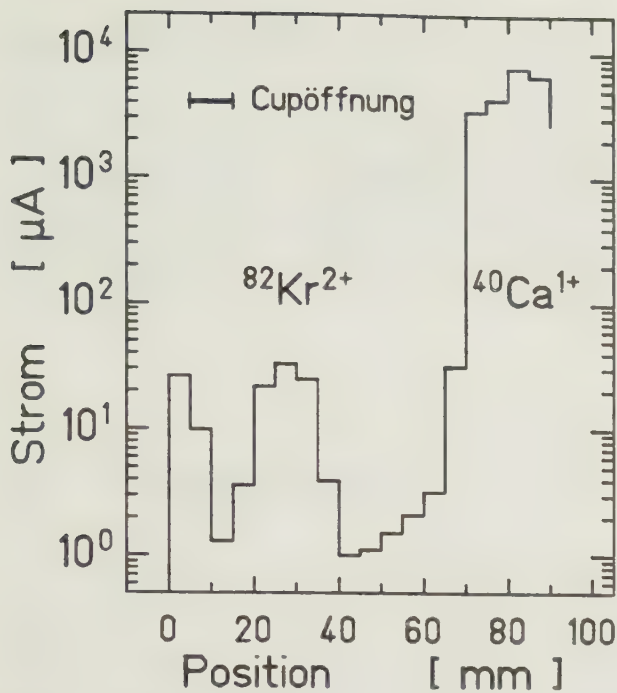


Abb. 3.8 In der Fokalebene gemessenes Strahlprofil mit $^{40}\text{Ca}^+$ - und $^{82}\text{Kr}^{2+}$ -Ionen. Für diese Messung wurde die später zur Anreicherung verwendete Tasche (Abb. 3.14, Abschnitt 3.4.1) als Faraday-Cup eingesetzt. Der bei Position 0 - 10 mm erkennbare Stromanstieg kommt durch $^{83}\text{Kr}^{2+}$ -Ionen zustande.

Neben der Massentrennung wird durch den Analysiermagneten die Akzeptanz vorgegeben, die vor allem die Divergenz des Ionenstrahles begrenzt. Mit der Divergenz steigt die radiale Ausdehnung der Ionenbahnen im Magneten, welche aber innerhalb des nutzbaren Bereiches des Magneten (26 cm, [Cam70]) bleiben sollte, andernfalls sinkt die Transmission. Wegen der räumlichen Trennung der Ionenbahnen im Magneten überschreiten vor allem die nichtzentralen Ionenstrahlen diesen Bereich, wodurch die Isotopenverhältnisse verfälscht werden (Fraktionation).

Die experimentelle Untersuchung der Fraktionation zeigte, daß diese weniger von der Divergenz, als vielmehr vom Einschub der Strahles in den Analysiermagneten abhängt (Abb. 3.9), der durch Rotation der Extraktionselektrode variiert wird. Diese Messung erfolgte mit einem Krypton-Strahl, weil dessen Intensität stabiler als die von Calcium-Strahlen ist, und weil außerdem die Isotopenhäufigkeiten von ^{82}Kr , ^{84}Kr und ^{86}Kr nur um einen Faktor 5 differieren, was für eine genaue Messung der Stromverhältnisse günstig ist.

Zur Transmissionsbestimmung wurde ebenfalls ein Krypton-Strahl verwendet. Für diese Messung (Abb. 3.10) wurden die Extraktionsbedingungen konstant gehalten und die Divergenz nur über den Ionenstrom variiert (Gl. 3.2). Das Absinken des massenseparierten Stroms bei Divergenzen über 130 mrad bedeutet deswegen, daß die Transmissionsverluste die Strömerhöhung übertreffen. Zur Bestimmung der Transmission wurde der Ionenstrom aus der Quelle nach Gleichung (3.3) bestimmt und mit einem Massenspektrum korrigiert, wobei vor allem der Anteil Kr^{2+} relevant war.

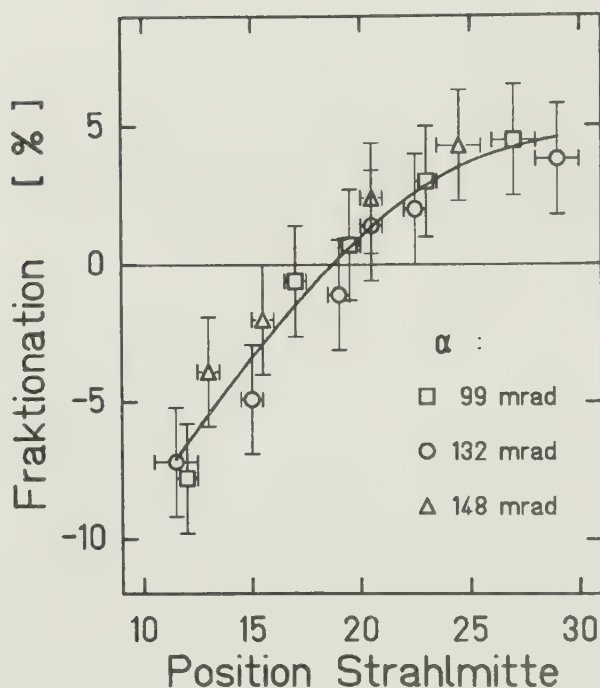


Abb. 3.9 Messung der Separator-Fraktionation für ^{84}Kr mit ^{82}Kr als zentralen Strahl. Auf der Abszisse ist die Strahlposition auf dem Profiltgitter vor dem Magneten als Drahtnummer aufgetragen. Die verschiedenen Symbole repräsentieren die verschiedenen Divergenzen α , wie in der Abbildung angegeben.

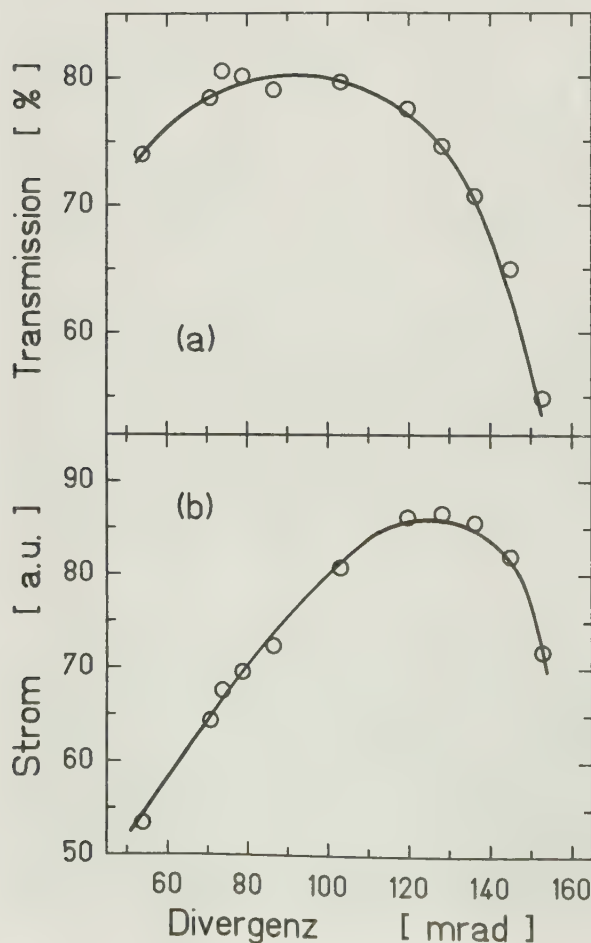


Abb. 3.10 Abhängigkeit der Transmission eines zentralen Strahles von der Divergenz (Abb. a) und des Stromes in der Fokalebene (Abb. b) bei konstanten Extraktionsbedingungen. Der Strom ist in willkürlichen Einheiten [a.u.] angegeben. Die Messung wurde mit einem Krypton-Strahl durchgeführt. Die Profilmittte lag bei den Gitterdrähten 19-20 (Abb. 3.9). Bei jeweiliger Optimierung der vertikalen Strahlführung mit der Extraktionselektrode wurden ca. 10 % höhere Transmissionen erreicht.

3.3 Bernas-Nier-Ionenquelle

Die Anreicherungen wurden mit einer Ionenquelle vom Bernas-Nier-Typ durchgeführt. Versuche mit einer Hochstrom-Ionenquelle vom Typ HORDIS [Kel86] zeigten, daß diese für ^{41}Ca -Anreicherung am GSI-Massenseparator wegen dem Streufeld des Analysiermagneten und wegen der zu kalten Bogenkammerwand umfangreiche Modifikationen erfordern würde [Ste88].

3.3.1 Funktionsprinzip

In Ionenquellen vom Bernas-Nier-Typ erfolgt die Ionenerzeugung in einer Niederdruck-Bogenentladung. Die für die Bogenentladung notwendigen Elektronen werden durch Thermoemission aus der Kathode, dem Filament, erzeugt. Die angelegte Bogenspannung zwischen Filament und den Wänden der Bogenkammer (Anode) gibt den Elektronen die notwendigen Energien, um die Gasmolekeln im Entladungsraum bei Stößen zu ionisieren. Zur Herstellung von Ionenstrahlen nicht gasförmiger Elemente, wie Calcium, werden diese durch Verdampfen oder chemische Umwandlung in die Gasphase überführt und dann in die Bogenkammer geleitet. Da Sekundärelektronen aus ionisierenden Stößen Energien von einigen 10 eV besitzen, tragen diese Elektronen im Fall von Calcium mit einer Ionisierungsenergie von 6,1 eV ebenfalls zur Ionisation bei. Bei der im Normalbetrieb großen Gasdichte und entsprechend hoher Ionenerzeugung im Entladungsraum wird die negative Raumladung der Elektronen durch positive Ionenladungen quasineutralisiert, d.h. es bildet sich ein Plasma. Der Übergang vom Plasma, dessen Potential ähnlich dem Anodenpotential ist, zur Kathode erfolgt über eine Raumladungsdoppelschicht um das Filament, bestehend aus der Elektronenwolke vor der Kathode und aus positiven Ionen an der Plasmagrenze (Kathodenfall). Dadurch wird die raumladungsbegrenzte Emission der Primärelektronen wesentlich erhöht. Nachteilig an diesem Prinzip ist allerdings der Verschleiß des Filaments durch Sputtereffekte der auftreffenden Ionen. Die Weglängen der Elektronen und damit die Ionisierungswahrscheinlichkeiten werden durch ein transversales, d.h. parallel zur Entladungsachse ausgerichtetes Magnetfeld vergrößert. Bei den typischen Magnetfeldstärken von 100-150 Gauß wird das Plasma so eingeschnürt, daß sich ein Plasmaschlauch bildet. Dadurch und durch die Einschnürung konzentriert sich die Plasmadichte vor dem Schlitz und der extrahierbare Ionenstrom wird vergrößert.

3.3.2 Aufbau der Ionenquelle

Die verwendete Bernas-Nier-Quelle (Abb. 3.11) war eine modifizierte Version des in Orsay entwickelten Typs [Sar65], [Cha67]. So wurde die Bogenkammer aus Graphit durch eine aus Tantal ersetzt, weil der "Memory"-Effekt des Graphits für Calcium zu stark war, und weil außerdem Calcium-Dampf mit Graphit oberhalb 800° C zu nicht flüchtigen Calciumcarbid reagiert und somit für die Ionisation verloren ist.

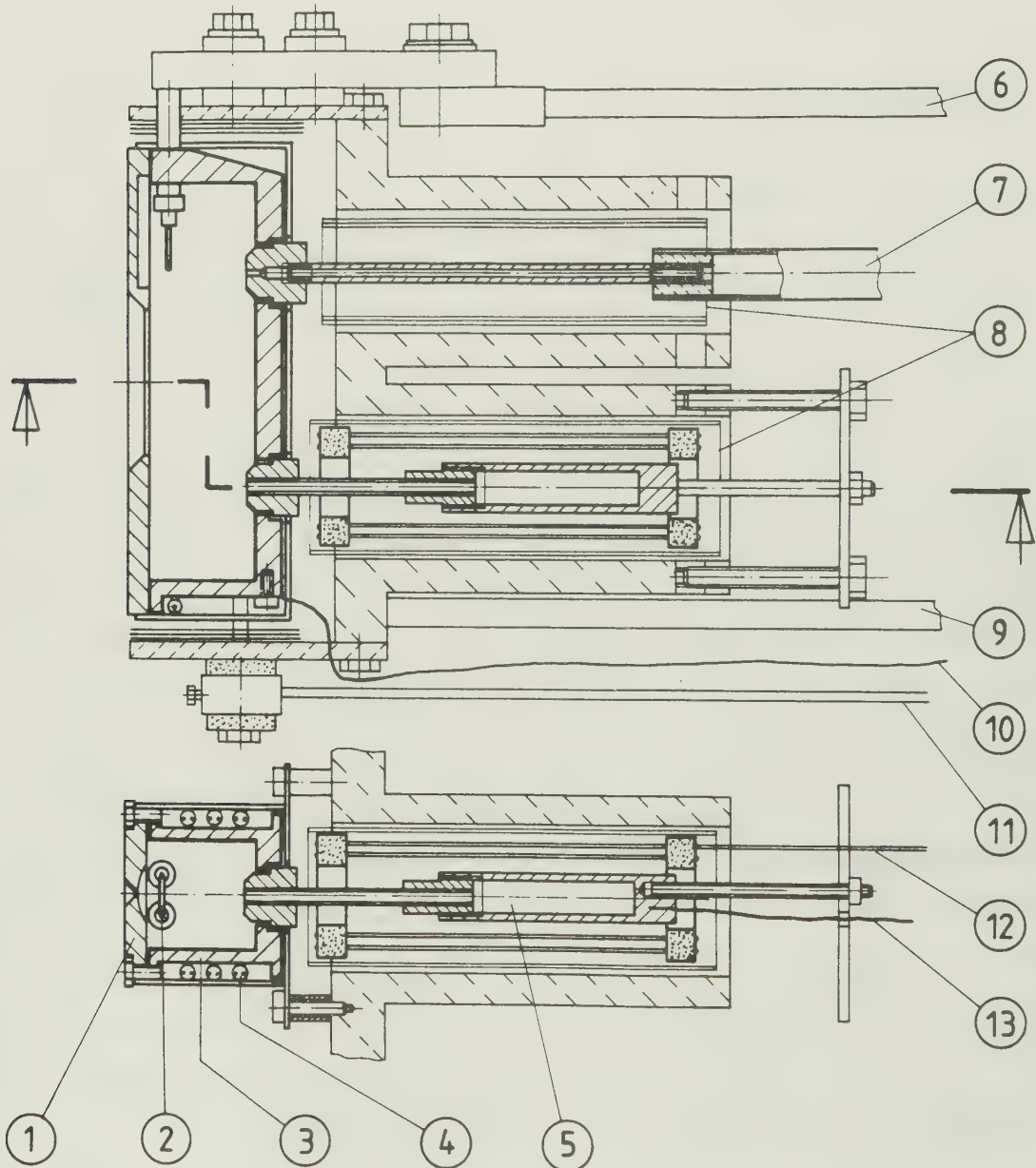


Abb. 3.11 Diagramm der Bernas-Nier-Ionenquelle: 1) Ionenquellendeckel mit Schlitz, 2) Filament (Wolfram-Draht mit 1,5 mm Ø), 3) Bogenkammer, 4) Bogenkammerheizung (Al_2O_3 -Keramik-Kapillaren mit Tantal-Draht), 5) Calcium-Tiegel, 6) Heizstromzufuhr für Filament (wassergekühlt), 7) Krypton-Gaszufuhr, 8) Molybdän-Hitzeschilder, 9) Kühlwasserleitung für die Grundplatte, 10) Thermoelement für Bogenkammer, 11) Stromzufuhr der Bogenkammerheizung, 12) Stromzufuhr des Calcium-Ofen, 13) Thermoelement für Calcium-Tiegel. Die Schraffuren kennzeichnen die verwendeten Materialien und sind im Anhang erläutert.

Ferner war die ursprüngliche Version auf einen raschen Wechsel der Ionensorte ausgelegt. Zwei Tiegel zur Verdampfung der Substanzen ließen sich ohne Belüften an zwei Stangen in die Öfen schieben. Zur Führung der Schiebebewegungen waren Quarzglasrohre installiert [Sar65]. Durch die großen Öffnungen zwischen den Öfen und Führungsrohren konnte jedoch Calcium aus der Bogenkammer wieder entweichen. Außerdem reagierte das heiße Calcium mit dem Quarzglas, und die Führungsrohre begrenzten den Durchmesser der Calcium-Tiegel (ursprünglicher Innendurchmesser 4 mm). Es wurde daher ein spezieller Ofen zur Aufnahme der Proben für die Calcium-Anreicherung entwickelt (Abb. 3.11). Dieser war zwar nur nach Belüften der Ionenquelle füllbar, hatte aber bezüglich Füllmenge und Temperaturregelverhalten günstigere Eigenschaften. Letzteres beinhaltet :

- wärmetechnische Entkopplung von Bogenkammer und Ofen durch minimierte Wärmeleitung,
- Reduzierung der benötigten Heizleistung durch die geringe Wärmeleitung der Befestigung,
- geringen Temperaturgradienten längs des Ofenhauptkörpers und
- schnelle Reaktion auf Änderungen der zugeführten Leistung durch geringe Wärmekapazität.

3.3.3 Betriebsparameter

Bei den Betriebsparametern der Ionenquelle muß man zwischen den die Entladung direkt beeinflussenden Größen, im folgenden unterstrichen, und den meßtechnisch erfaßten Werten unterscheiden. Zeitlich nicht immer konstante Abhängigkeiten zwischen diesen führt zu einer eingeschränkten Reproduzierbarkeit.

1. Der Calcium-Partialdruck in der Bogenkammer: Da dieser Parameter sich der direkten Messung entzieht, wurde die Temperatur T_{Ca} des Calcium-Ofens mit einem NiCr-Ni Thermoelement gemessen. Die Relation zwischen Calcium-Partialdruck und Temperatur ist abhängig von Faktoren, wie Füllmenge des Ofens, Oxidation des Calcium-Probenmaterials, thermischer Kontakt und Alter des Thermoelementes. Beim Betrieb mit einem Calciumoxid-Zirkon Gemisch (siehe Abschnitt 3.5.2), bei dem Temperaturen außerhalb des Bereiches von NiCr-Ni Thermoelementen gebraucht wurden, wurde T_{Ca} nicht mehr gemessen.
2. Der relative Krypton-Partialdruck wurde bestimmt, indem eine Kapillare zwischen dem Nadelventil und der Ionenquelle eingebaut wurde und der sich einstellende Gasdruck P_{Kr} vor der Kapillare gemessen wurde. Dieser schwankte um $\pm 5\%$ mit einer Schwingungsdauer im Sekundenbereich, vermutlich auf Grund der Instabilität des Druckminderers. Eingestellt wurde der Durchfluß mit einem Nadelventil.

3. Der Bogenstrom I_A oder die Bogenspannung U_A : Von diesen Parametern ist bei Konstanz der übrigen Parameter nur einer unabhängig wählbar. Um Bedingungen mit verschiedenen Krypton-Partialdrücken vergleichen zu können, wurde die Bogenspannung als unabhängiger Parameter gewählt.
4. Das Ionenquellenmagnetfeld H_S wurde von externen Spulen mit Eisenkernen erzeugt (Maximum: 300 Gauß) und ohne Berücksichtigung der Hysterese nur durch den Strom erfaßt.
5. Die Kathodentemperatur, die für die Elektronenemission relevant ist, konnte ebenfalls nicht direkt gemessen werden. Stattdessen wurde der Kathodenstrom I_K herangezogen. Somit wurde die zusätzliche Energiezufuhr durch die Bogenentladung und die Erhöhung des ohmschen Widerstandes des Filamentes durch Absputtern nicht erfaßt.
6. Die Ionenstromdichte j wurde bei dieser Untersuchung nicht gemessen. Gemessen wurde, weil für die spezielle Zielsetzung der Calcium-Anreicherung sinnvoller, der separierte ^{40}Ca -Strom I_{Ca} , wobei die Fläche des Ionenquellenschlitzes F immer $30 \times 1 \text{ mm}^2$ (Höhe $\times$ Breite) betrug. Beim Vergleich von j aus der Literatur mit Werten I_{Ca}/F aus dieser Arbeit, muß man berücksichtigen, daß üblicherweise j für definierte Extraktionsbedingungen (i.a. Meniskusradius $\gamma=0$) gemessen wird, während I_{Ca} in dieser Arbeit bei jeweils optimierten Extraktionsbedingungen gemessen wurde. Zum anderen beinhaltet I_{Ca} die Transmissionsverluste durch den Massenseparator. Um Fokussierungsqualitäten nicht berücksichtigen zu müssen, hatte der verwendete Faraday-Cup eine Öffnung von 40 mm Breite.

Es zeigte sich, daß, den Erwartungen entsprechend, die Temperatur der Bogenkammer keinen Einfluß hat, solange sie so hoch ist ($> 750^\circ \text{C}$), daß das Calcium nicht kondensiert.

Die folgende Studie beschränkt sich auf die Untersuchung der Frage, welcher Satz von Betriebsparametern (T_{Ca} , P_{Kr} , U_A , H_S und I_K) den Anforderungen der Calcium-Anreicherung am ehesten gerecht wird. Sie ist deshalb nicht mit systematischen Studien an Ionenquellen zu vergleichen, wie sie mit Edelgasen [Cha67] für die Bernas-Nier-Quelle durchgeführt wurden.

Die Forderung nach hoher Ausbeute erfordert das Betreiben der Quelle im "Pressure Limited Mode" (PLM), d.h., daß der Dampfdruck des Calciums der begrenzende Faktor ist und nicht der Kathodenstrom ([Cha67], [Kan76]). Da aber auch der Ionenstrom groß sein soll, darf nicht der Calcium-Dampfdruck niedrig, sondern der Kathodenstrom muß genügend hoch sein. Bei stichprobenartigen Messungen wurde der PLM-Betrieb bei Filamentströmen von 125-135 A erreicht. Bei der folgenden Parameteruntersuchung betrug deshalb $I_K = 133 \text{ A}$. Die Zahl der Meßpunkte wurde weiter dadurch reduziert, daß das Ionenquellenmagnetfeld bei gegebenem Satz der anderen Parameter jeweils auf maximalen ^{40}Ca -Strom in der Fokalkammer optimiert wurde. Die Größen U_A und I_A dieser Arbeit entsprechen deshalb U_a^* und I_a^* bei [Cha67].

Ein großes Problem bei der Parameter-Untersuchung war das Auftreten von Zeitkonstanten im Bereich von Minuten für die Einstellung eines neuen Gleichgewichtswertes für den Ionenstrom bei Parameteränderungen. Diese Zeitkonstanten kann man mit langen Wandhaftzeiten der Calcium-Atome an den Tantal-Wänden erklären. Die Wandhaftzeiten bei einer reinen Tantal-Oberfläche liegen selbst bei 900°C über 10^6 Sekunden, berechnet mit der von [Kir87] gemessenen Adsorptionsenthalpie von Calcium auf Tantal von 4,9 eV. Folglich sind die Wände zwar mit mehreren Atomlagen von Calcium belegt, aber nicht mit so vielen Lagen, daß es als reine Calcium-Schicht wirkt, denn sonst wären zum einen die Zeitkonstanten nicht so groß, und zum anderen wäre die Bogenkammertemperatur dann ein sehr relevanter Parameter. Die Zeitkonstanten verursachen einen Zeitaufwand bei der Messung des Ionenstroms I_{Ca} bis zu 30 Minuten pro Parametersatz T_{Ca} , P_{Kr} und V_A . Dies gilt vor allem deshalb, weil die Optimierung von H_S eine zwischenzeitliche Stabilisierung erfordert. Bei diesen Zeitabständen muß zwischen den Meßwerten kontrolliert werden, inwieweit der Calcium-Partialdruck konstant geblieben ist. Das resultierende Meßverfahren ist in Abb. 3.12 und die Ergebnisse sind in Abb. 3.13 dargestellt.

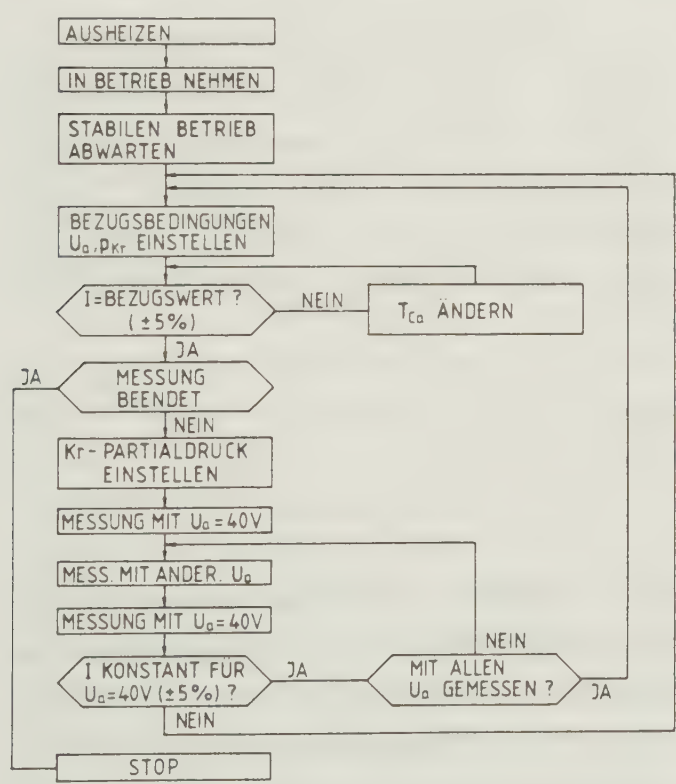


Abb. 3.12 Verfahren zur Messung der ^{40}Ca -Ströme I_{Ca} , in dem Schema als "I" bezeichnet. Der Bezugspunkt zur Kontrolle des Calcium-Partialdruckes war $I_{Ca}=5.7\text{ mA}$ bei einem Kryptonfluß von 7×10^{16} Atomen/s und $U_A=40\text{V}$. I_K betrug 133 A.

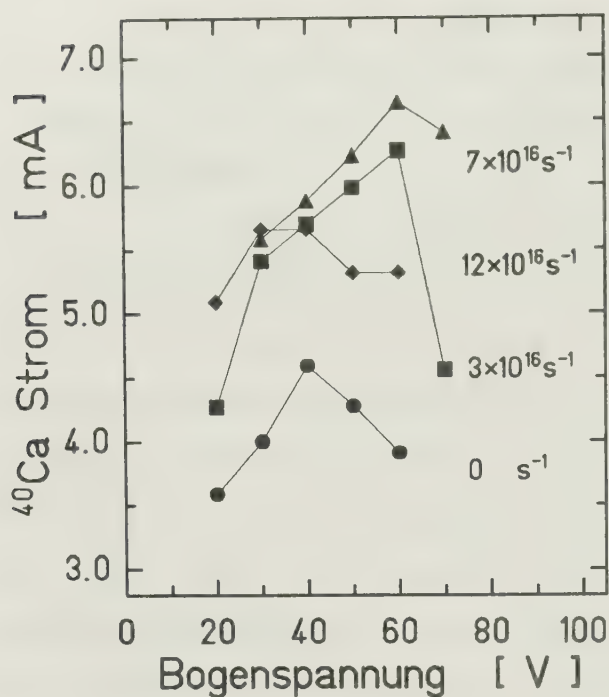


Abb. 3.13 ^{40}Ca -Ströme I_{Ca} bei konstantem Calcium-Partialdruck. Es wurde das in Abb. 3.12 dargestellte Meßverfahren angewendet. Die Symbole kennzeichnen die verschiedenen Kryptonflüsse von 0 bis 12×10^{16} Atome/s. Der relative Fehler von Meßpunkten mit gleichem Kryptonfluß wird auf $\pm 5\%$ geschätzt, mit verschiedenem Kryptonfluß auf $\pm 10\%$.

Die erreichbaren Ionenströme I_{Ca} sind nicht durch die Ionenquelle begrenzt, sondern durch die Extraktion und die Akzeptanz des Analysiermagneten. Je größer der Strom ist, desto geringer muß der Abstand zur Extraktionselektrode eingestellt werden, um die ionenoptisch notwendige Krümmung des Plasmameniskus und damit die Divergenz (Gl. 3.2) zu erreichen. Mit der Routine zahlreicher Anreicherungen wurden Strömen I_{Ca} bis 10 mA erreicht (Abschnitt 3.4.2), begrenzt durch Probleme mit der vertikalen Fokussierung, die für die Anreicherung störend waren.

3.3.4 Langzeitbetrieb

Der für praktikable Anreicherungen notwendige große Durchsatz, d.h. Stromintegral von I_{Ca} pro Tag, erfordert auch bei den Maximalströmen von mehreren Milliampere lange Betriebszeiten pro Tag. Diese sind beim Effizienz-optimierten Betrieb der Ionenquelle (PLM-Betrieb) vor allem begrenzt durch die Filament-Lebensdauer. Eine systematische Untersuchung der Filament-Lebensdauer war zu aufwendig, da die Lebensdauer von zu vielen Parametern abhängt, nämlich Ionensorte (d.h. Krypton-Beimischung), Heizstrom I_{K} , Bogenspannung U_{A} , Bogenstrom I_{A} und der vorherigen Bearbeitung des Wolfram-Drahtes. Als Maßnahme zur Verlängerung der Filament-Lebensdauer wurde der Bogenstrom I_{A} auf ≤ 5 A begrenzt und zwar durch Senkung des Heizstroms I_{K} . Dies war nur bei einem Teil der Anreicherungen nötig und wurde auch dann nur bei dem Anfahren der Ionenquelle durchgeführt, auch wenn die Bogenströme später stiegen.

Diese Maßnahme reduzierte zwar die Effizienz der Ionenquelle, ermöglichte aber Betriebszeiten (ohne Startphase) bis zu 16 Stunden.

Speziell für den Langzeitbetrieb ist eine elektronische Regelung der Temperatur des Calcium-Ofens wichtig. Durch den Einfluß des Ionenstromes auf den Meniskus des Plasmas (Abb. 3.2), und damit auf den virtuellen Fokus, ist dessen Stabilität Voraussetzung für konstante Fokussierungsbedingungen. Außerdem lag der Calcium-Partialdruck bei Betriebsbedingungen nahe an der Zündbedingung einer Entladung zwischen Extraktion und Ionenquelle, so daß "Überschwinger" in der Ofentemperatur vermieden werden mußten. Deswegen wurde zur Steuerung der Heizleistung eine Temperaturstabilisierung entwickelt, die vom Prinzip her ein PI-Regler (**P**roportional und **I**ntegral-Regler) war, d.h. das Steuersignal setzte sich zusammen aus einem Anteil proportional zur Differenz von Soll- und Ist-Wert und einem Anteil, der dem Integral dieser Differenz über die Zeit entspricht. Der Soll-Wert, die Faktoren des Proportional- und des Integralanteiles, sowie der maximale Heizstrom, waren digital an einer Steuereinheit auf Erdpotential einstellbar. Diese war durch Lichtleiter mit der auf Ionenquellenpotential befindlichen Regeleinheit verbunden. Es zeigte sich, daß die Temperatur des Calcium-Ofens als Sollwert, insbesondere in der Startphase des Ionenquellenbetriebs, ungünstig ist. Stattdessen wurde der Hochspannungsstrom I_{HV} als Signal für die Regelung verwendet und damit eine ausreichende Kurzzeitstabilität erzielt.

Die Langzeitstabilität war jedoch ungenügend und mußte von Hand korrigiert werden. Die Ursache liegt darin, daß der Hochspannungsstrom I_{HV} nur zu 2/3 aus Ca^+ -Ionen bestand. Das fehlende Drittel setzte sich aus Ca^{2+} , Kr^+ , Kr^{2+} und verschiedenen Leckströmen zusammen, wie z. B. I_{Ex} (siehe Gl. 3.3). Diese Ströme zeigten im allgemeinen eine steigende Tendenz um bis zu 10 % pro Stunde. Die Korrektur erfolgte meist über eine Sollwerterhöhung von I_{HV} , auch wenn einer der Ursachen das mit zunehmender Betriebsdauer dünner werden Filament war. Da diese bei der GSI entwickelte Regelung während der Anreicherungen defekt war, mußte eine kommerzielle Temperaturstabilisierung (Fabrikat: Shimaden, Typ: SR10) eingesetzt werden, welche als PID-Regler arbeitete, d. h. das Steuersignal setzte sich aus **P**roportional-, **I**ntegral und **D**ifferential-Anteilen zusammen. Der Differenzialanteil erwies sich jedoch als ungünstig für eine Nachoptimierung von H_G , weil er auf die damit verbundene Stromänderung zu schnell reagierte und die Ofentemperatur nachregelte. Auch die Zeitkonstanten, also die PID-Faktoren, ließen sich nur ungenügend an den Ofen anpassen. Dies mußte durch eine knapp bemessene Vorgabe des maximalen Heizstromes ausgeglichen werden.

3.4 Anreicherung

3.4.1 Konzept

Die Anreicherung läßt sich durch fünf Parameter charakterisieren, die sowohl vom Massenseparator-Typ als auch vom Konzept der Anreicherung abhängen:

1. Anreicherungsfaktor, d.h. Verhältnis der $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$ - Konzentrationen vorher zu nachher;
2. Genauigkeit des Anreicherungsfaktors;
3. Abreicherung von ^{42}Ca , ^{43}Ca und ^{44}Ca , welche ansonsten Untergrund-Probleme bei der AMS-Messung verursacht hätten;
4. Gesamteffizienz, d.h. Verhältnis von der Menge der angereicherten Probe multipliziert mit dem Anreicherungsfaktor zu dem in die Ionenquelle eingesetztem Calcium;
5. Masse der angereicherten Proben, wobei durch die chemische Prozedur und die AMS-Ionenquelle eine Mindestmenge vorgegeben wird; größere Proben führen in der Regel nicht zu höherer Meßgenauigkeit bei der AMS-Messung.

Der maximal mögliche Anreicherungsfaktor wird durch die Ausläufer der Peaks der anderen Calcium-Isotope an der Position der Masse 41 auf circa 10^4 begrenzt (Abb. 3.8). In der Praxis ist die Anreicherung jedoch durch den in Gleichung 3.4 dargestellten Zusammenhang begrenzt. Bei 10 mg Calciumgehalt der angereicherten Probe als Minimum, einem den Durchsatz von 130 mg/Tag ($\approx 86 \text{ mAh/Tag } I_{\text{Ca}}$) und einer Aufsammeleffizienz von 50 % (inklusive der chemischen Aufbereitung) würde die Anreicherung um einen Faktor 10^4 eine Betriebszeit von ca. 4 Jahren erfordern.

$$\text{Betriebszeit} = \frac{\text{Probenmenge} \times \text{Anreicherungsfaktor}}{\text{Durchsatz} \times \text{Aufsammeleffizienz}} \quad (3.4)$$

Auch die Genauigkeit des Anreicherungsfaktors hängt stark vom Konzept ab. Bei der Bestimmung des Anreicherungsgrades gibt es mehrere denkbare Möglichkeiten, z. B. Strommessungen oder Wägung der aufgesammelten Massen.

Die Strommessung verbietet die Verwendung eines Pilotstrahles zum Überprüfen der Aufsammlerposition von $^{41}\text{Ca}^+$ (z. B. $^{41}\text{K}^+$ oder $^{82}\text{Kr}^{2+}$) und birgt somit große Fehlerquellen.

Durch Wägung der Tascheninhalte von Masse 41 und einem Referenzisotop läßt sich der Anreicherungsgrad nur unter den folgenden Voraussetzungen bestimmen:

1. gleicheffizientes Aufsammeln von Masse 41 und Referenzisotop,
2. gleiche Sputterverluste für beide Strahlen und
3. gleicheffizientes Auslösen der Tascheninhalte von Masse 41 (wenige Milligramm) und Referenzisotop (bei ^{40}Ca mehrere Gramm).

Dieses Verfahren wurde von [Hen86] angewandt, hat aber besonders bei kleinen Probenmengen große Unsicherheiten und wurde daher in dieser Arbeit nicht verwendet.

Aus den genannten Gründen wurden die Anreicherungen wie folgt durchgeführt: In Phase (a) sammelte eine Tasche an der Position der Masse 41 (bestimmt durch $^{82}\text{Kr}^{2+}$) den Strahl auf, bis das Integral des zugehörigen ^{40}Ca -Stromes, parallel gemessen in einem Faraday-Cup, X Coulomb erreichte. X war je nach Probe im Bereich von 25-50 C. Danach wurde durch Variation der Beschleunigungsspannung U_{HV} in Phase (b) für kurze Zeit ^{40}Ca in die Masse 41-Tasche geschossen, bis Y Coulomb aufgesammelt waren. In der Regel war $Y=1$ C. Der Anreicherungsfaktor nach diesem Verfahren ist durch X/Y gegeben. Voraussetzungen sind:

1. keine Fraktionation durch den Separator;
2. gleiche Fokussierung in die Tasche wie in den Cup (während der Sammelphase von ^{41}Ca);
3. genaue relative Strommessung von ^{40}Ca im Cup in der Sammelphase zu ^{40}Ca in der Tasche, also von X und Y ;
4. gleiche Aufsammelleffizienz von ^{40}Ca und ^{41}Ca in der Tasche;
5. Vernachlässigbarkeit des durch schlechter Massenauflösung bedingten ^{40}Ca -Anteils in der Tasche.

Auf diese Punkte wird im folgenden einzeln eingegangen, wobei anzumerken ist, daß die Punkte 1 und 2 Voraussetzung sind für alle Anreicherungskonzepte.

Eine Fraktionation durch den Separator kann vor allem durch falsche Positionierung des Strahles am Magneteintritt erfolgen (Abb. 3.9). Die Genauigkeit der Positionierung der Strahlmitte auf dem Profilgitter während den Anreicherungen wurde auf ± 2 Gitterabstände geschätzt. Daraus resultiert ein Beitrag der Fraktionation zur Unsicherheit der Anreicherungs-faktors von $\pm 1,5\%$.

Der Aufbau in der Fokalebene (Abb. 3.14) sieht für den ^{40}Ca -Cup eine breite Öffnung (40 mm breit, 90 mm hoch) vor, so daß die Fokussierung auf die Tasche optimiert werden kann und trotzdem der gesamte ^{40}Ca -Strom gemessen wird. Obwohl die Taschenöffnung ebenfalls nicht klein war (10 mm breit, 63 mm hoch), sah man an den Blendenströmen, daß die Fokussierung in die Tasche nicht ganz vollständig erfolgte. Der daraus folgende Fehler für den Anreicherungsfehler wird auf $\begin{smallmatrix} +0\% \\ -10\% \end{smallmatrix}$ geschätzt.

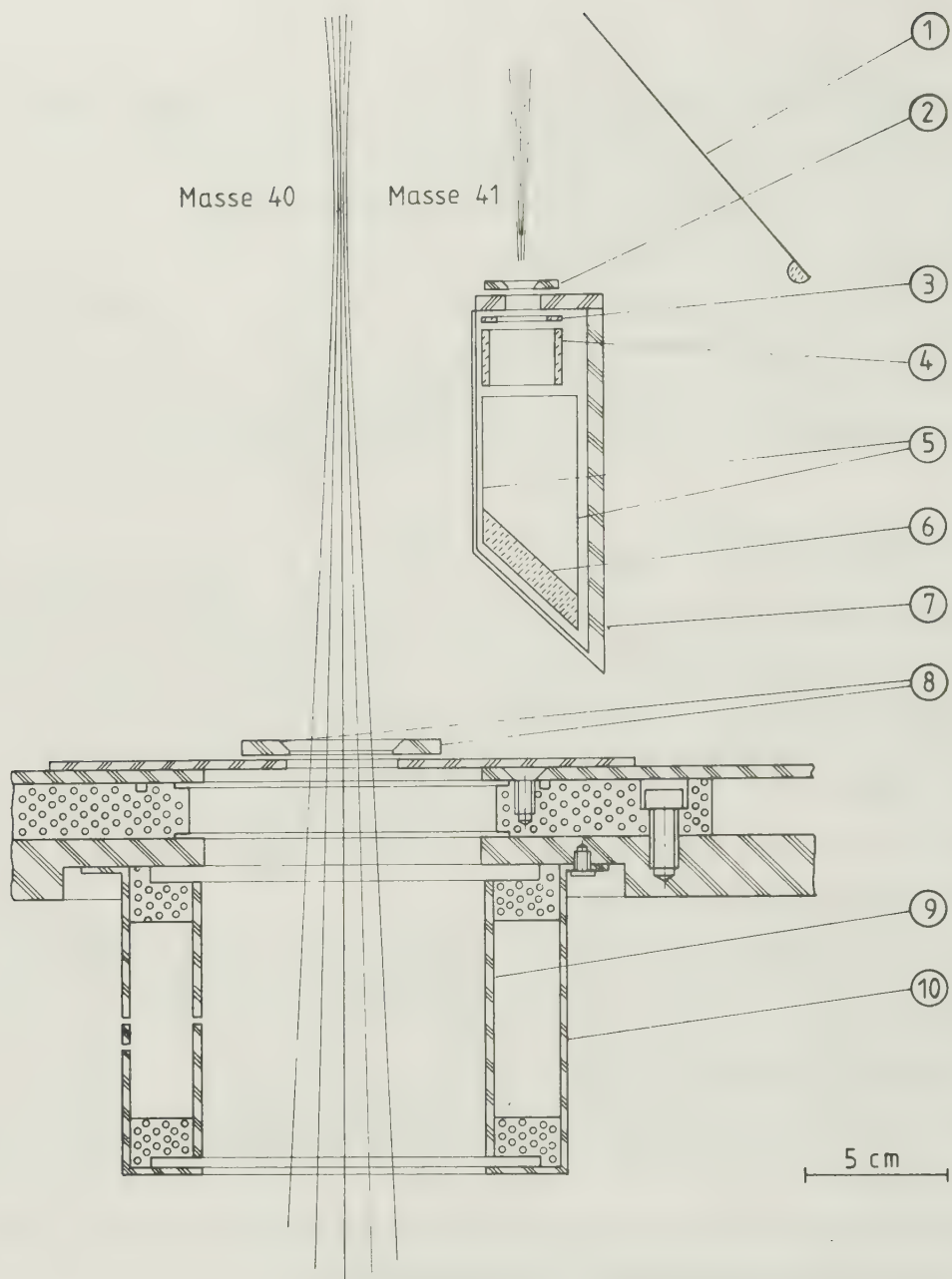


Abb. 3.14 Zur Anreicherung verwendeter Aufbau in der Fokalkammer. Die Komponenten sind: 1) Blende zum Verschließen der Tasche während der Startphase, 2) Blenden, isoliert zur Strommessung, 3) Sperrelektrode (-700 V), 4) Sperrelektrode (-200 V), 5) Seitenwände aus Tantal, 6) Strahlstopper, wassergekühlt, zusammen mit den Seitenwänden Nr. 5 elektrisch isoliert zur Strommessung, 7) geerdete Außenwand, 8) Blenden, isoliert zur Strommessung, 9) Sperrelektrode (-1 kV) und 10) Abschirmung der Sperr-elektrode. Der Strahlstopper des Faraday-Cups ist nicht eingezeichnet (Abb. 3.1). Die Schraffuren kennzeichnen die verwendeten Materialien und sind im Anhang erläutert.

Sowohl der Faraday-Cup wie die Tasche (die eigentlich auch einen Faraday-Cup darstellt) sind zur genauen Messung von großen Strömen konzipiert. Während der Cup dies durch seine große Länge von 700 mm sicherstellt, basiert die Konstruktion der Tasche auf Computer-Berechnungen unter Einbeziehung von Raumladungseffekten [Ken79]. Als Test wurden die Isotopenverhältnisse von Krypton als Funktion der Feldstärke des Analysiermagneten (d.h.

ohne Fraktionation durch den Separator) untersucht und auch Cup- und Taschenströme verglichen. Die in Cup und Tasche gemessenen Ca-Ströme stimmen bei guter Strahlfokussierung besser als $\pm 1 \%$ überein.

Um eine gleiche Aufsammeleffizienz von ^{40}Ca und ^{41}Ca in der Tasche zu erreichen, wurden viele Wechsel der Phasen (a) und (b) (mehr als 40 pro Probe) durchgeführt. Dieses Verfahren gewährleistet eine vollständige Mischung der Isotope und schließt deshalb Fraktionation durch Sputtern, eventuelles Verdampfen oder unvollständige Extraktion aus der Tasche aus. Der Ausläufer von ^{40}Ca an der Position der Masse 41 von $\sim 10^{-4}$ des Maximums der ^{40}Ca -Linie hat bei den geringen Anreicherungsfaktoren ≤ 100 keinen Einfluß. Auch dann nicht, wenn dieser aufgrund neutraler, gestreuter ^{40}Ca -Atome etwas höher liegen sollte.

Somit resultiert der größte Fehler im Anreicherungsgrad bei diesem Konzept von der ungleichen Fokussierung in die Tasche und in den Cup. Der Anreicherungsfaktor wird deshalb im folgenden mit $0,95 \times (X/Y) \pm 6 \%$ angegeben.

Neben dem Anreicherungsfaktor und dessen Genauigkeit ist die Abreicherung von ^{42}Ca , ^{43}Ca , und ^{44}Ca einer der fünf Basisparameter. Die Abreicherung entspricht der Massentrennung des Separators, d.h. sie ist nicht reziprok zum Anreicherungsfaktor. Die erreichten Werte für die übrigen Parameter, wie z. B. Gesamteffizienz und Masse der angereicherten Probe, werden im nächsten Abschnitt im Zusammenhang mit der Durchführung der Anreicherung dargelegt.

3.4.2 Durchführung

Angeichts einer beschränkten Anzahl von Anreicherungen, die durchgeführt werden konnten, wurden mit Blick auf eine mögliche ^{41}Ca -Altersbestimmung nur Proben von einer Tierart aus einem Gebiet untersucht (siehe Kapitel 5) und zwar Rehe aus dem Odenwald. Die Nummerierung der Proben und der Betriebstage des Massenseparators (im folgenden "Runs" genannt) folgt dem Protokollbuch und gibt die zeitliche Reihenfolge des Eingangs bzw. der Durchführung an. Bislang wurden vier angereicherte Proben mit AMS vermessen, und zwar die Proben #15, #22 und #23 aus Rehknochen von 1987, vor 1950 und 1905 und die der Probe #41, bei der ^{40}Ca angereichert, also ^{41}Ca abgereichert wurde, um eine Blank-Probe als Test für die AMS zu erhalten. Zur Herstellung der Proben wurden die Knochen zuerst gereinigt, bei 800°C über mehrere Stunden verascht, in Salzsäure (HCl) aufgelöst, das Calcium mit Ammoniumoxalat ausgefällt (pH-Wert ≥ 4) und durch Brennen bei 1100°C in Calciumoxid (CaO) überführt. Danach erfolgte die Reduktion von Calciumoxid mit Zirkon bei hohen Temperaturen (bis 1500°C) im Vakuum und gleichzeitiger Destillation des metallischen Calciums.

Diese Reduktion wurde für die Runs 189 und 190 extern [Mai87] durchgeführt. Um Verluste beim Auffangen des destillierten Calciums, Lagerung und Transport zu vermeiden, wurde die Reduktion bei den übrigen Runs in der Ionenquelle durchgeführt. Da auch hierbei nur der metallische Calcium-Dampf in die Bogenkammer gelangt, besteht für die Entladung kein Unterschied. Durch die Hitzezufuhr konnte die Reaktion so gesteuert werden, daß der Calcium-Dampf den Erfordernissen der Ionenquelle entsprach. Das gemahlene Calciumoxid wurde mit Zirkonstaub (Korngröße 90 μm von Merck, Darmstadt) in einem Gewichtsverhältnis von 1:2,7 [Mai87] gemischt. Das Gemisch wurde zu Pillen gepresst und in den Calcium-Ofen der Ionenquelle (Teil Nr. 5, Abb. 3.11) gefüllt.

Die Prozedur der Runs wurde auch während der Anreicherungen weiterentwickelt, so z. B. der Füllungsgrad des Ofens und das Ausheizverfahren. Anfangs beschränkte sich das Ausheizen auf den Calcium-Ofen (durch dessen Heizung, Teil Nr. 12, Abb. 3.11) und auf das Filament (durch ohmsche Heizung), dessen Hitze sich auf die Bogenkammer übertrug. Die resultierende Rate der Überschlüge lag bei 5-20 pro Stunde für eine Beschleunigungsspannung $U_{\text{HV}} = 40 \text{ kV}$ und bei einem Abstand der Extraktionselektrode von 15-20 mm, was $I_{\text{Ca}} \sim 7 \text{ mA}$ entsprach. Durch Reduzierung von U_{HV} auf 30 kV mußte zum Erreichen der gleichen Divergenz beim gleichen Strom auch der Abstand verringert werden, weswegen die Rate konstant blieb.

Bessere Überschlagsfestigkeit und damit die Möglichkeit zur Stromsteigerung ergab sich erst nach zusätzlicher Reinigung der Extraktionselektrode durch Aufheizen im Vakuum. Dazu wurde eine Krypton-Entladung mit großer Leistung ($U_{\text{A}} \geq 70 \text{ V}$, $I_{\text{A}} \geq 4 \text{ A}$) gezündet und durch die resultierende Wärmestrahlung der Bogenkammer wurde die Extraktionselektrode ebenfalls aufgeheizt. Vermutlich wurden dabei Schichten entfernt, die sich beim vorigen Ofen-, Filament- und Bogenkammer-Ausgasen niedergeschlagen hatten. Auf diese Weise wurden ab Run 190 Ströme I_{Ca} bis 10 mA erreicht, nun allerdings begrenzt durch Probleme mit der vertikalen Fokussierung beim Aufsammeln der separierten Ionenströme. Aus Zeitgründen wurden diese Fokussierungsprobleme nicht behoben.

Bei jedem Anfahren der Ionenquelle erfolgte das erste Aufheizen des Calcium-Ofens mit manueller Steuerung, um das Ionenquellen-Magnetfeld optimieren zu können und um den notwendigen Heizstrom zu bestimmen, der danach der elektronischen Regelung als Maximalwert vorgegeben wurde. Um ein Abkühlen der Bogenkammer und damit eine Kondensation des Calciums zu verhindern, wurde die Reduzierung von Bogenspannung (auf 50 V) und Krypton-Fluß (bis $^{82}\text{Kr}^{2+} \sim 20 \mu\text{A}$) entsprechend dem Anwachsen des Calcium-Anteils vorgenommen. Falls bei Erreichen des gewünschten Wertes von I_{Ca} der Bogenstrom $I_{\text{A}} \geq 5 \text{ A}$ war, wurde er durch Reduzierung des Filament-Stromes gesenkt (Abschnitt 3.3.4). Erst danach wurde die Steuerung des Heizstromes der elektronischen Regelung übergeben und mit dem Aufsammeln der Ionen begonnen.

Das Aufsammeln wurde dann solange durchgeführt, bis entweder das Filament brach oder das Calcium im Ofen verbraucht war. (Außer Run 212 zur Herstellung der Blank Probe #41, bei dem die aufgesammelte Probenmenge vorher ausreichte.) Der Zeitbedarf für einen Run setzte sich zusammen aus ca. 1,5 Stunden Startphase bis zum Beginn des Aufsammelns, bis zu 16 Stunden Aufsammelzeit und ca. 2 Stunden Herstellung der Betriebsbereitschaft, gefolgt von mehreren Stunden Abpumpzeit. Die Zahl der durchgeführten Runs je Probe (Anreicherung) ist in Tabelle 3.2 bzw. Abb. 3.20 aufgeführt. Bei einem Teil der Runs wurde allerdings wegen technischer Probleme, wie z. B. zu vieler Überschlüge, kein stabiler Betrieb erreicht und deswegen nicht aufgesammelt.

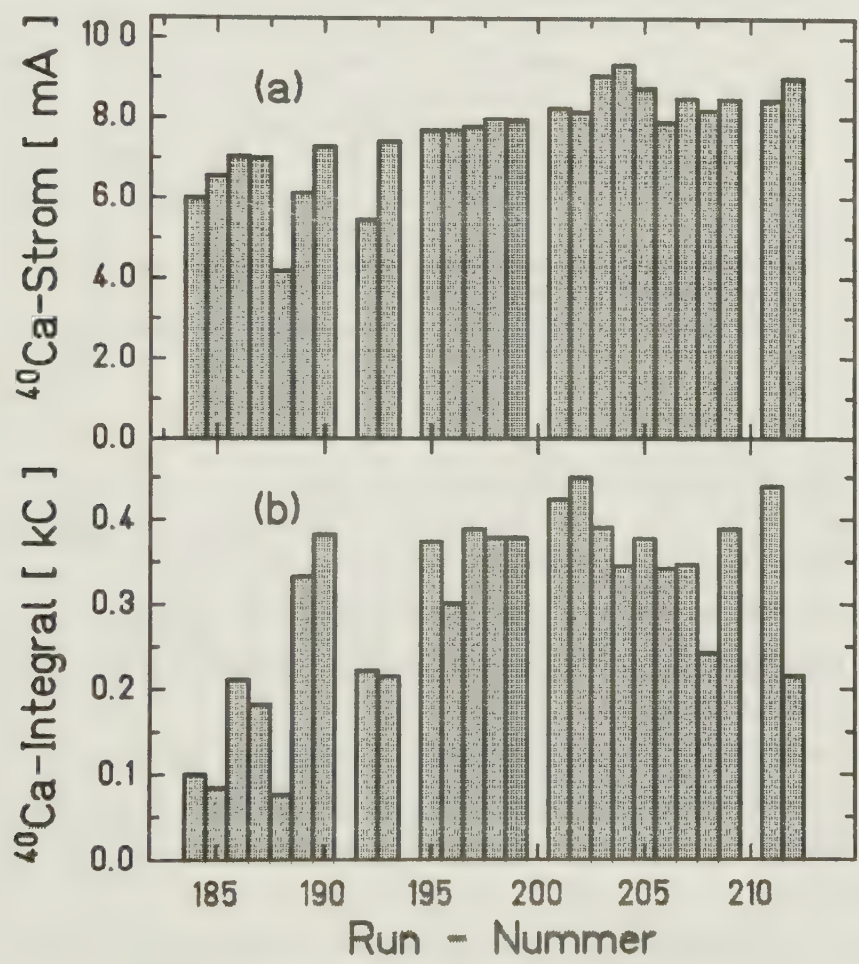


Abb. 3.20 Mittelwerte des ^{40}Ca -Stromes I_{Ca} in mA und integrierte Ströme in 10^3 C. Run 184-192 und Run 200-205 wurden mit Probe #23, Run 193-199 mit Probe #22 und Run 206-211 mit Probe #15 durchgeführt. In Run 212 wurde die Blank-Probe #41 durch alleiniges Aufsammeln von ^{40}Ca hergestellt.

Um am Ende jeder Anreicherung das angereicherte Calcium aus der Tasche zu extrahieren, wurde die Oberfläche des Strahlstoppers (Teil Nr. 6, Abb. 3.14), in die das Calcium teilweise implantiert war, um mindestens 0,5 mm abgefräst. Die Fräs-Späne wurden, zusammen mit dem

abgekratzten Calcium-Kupfer Gemisch, welches auf die Tantal-Seitenwände gesputtert war, in Salzsäure ausgewaschen. Da sich Kupfer nicht in Salzsäure löst, konnte es danach abgefiltert werden. Die darauf folgende Prozedur bis zur Füllung der Tandem-Ionenquelle (Kap. 4) ist in Tabelle 3.1 aufgeführt. Weil eine Röntgenfluoreszenz-Analyse Eisen- und auch Bleiverunreinigungen zeigte, wurden die Schritte 6 bis 6 aus Tabelle 3.1 als Nachreinigung durchgeführt.

Tabelle 3.1: Chemische Behandlung der Proben nach der Anreicherung.

Schritt	Prozess
1	Herauslösen der angereicherten Probe aus der Tasche (siehe Text);
2	H ₂ S-Fällung von Verunreinigungen, Filtrierung;
3	Oxalsäure-Fällung des Calciums mit (NH ₄) ₂ C ₂ O ₄ ; (der pH-Wert wurde mit NH ₄ OH auf pH≥3-eingestellt), Zentrifugierung;
4	Lösung in HCl, Wiederholung von Schritt 3;
5	Brennen bei 500°C zur Überführung in CaCO ₃ ;
6	Oxidation von Fe(II) zu Fe(III) mit HNO ₃ (konz.);
7	Hydroxidfällung von Fe(III) mit NH ₄ OH;
8	Oxalatfällung des Calciums (wie Schritt 3), Filtrierung;
9	Brennen bei 1100°C zur Überführung in CaO;
10	Reduktion des CaO mit Zirkon-Pulver zu metallischen Calcium; und Vakuumdestillation bei 1400°C;
11	Umformung zu CaH ₂ in einer Wasserstoff-Atmosphäre bei 500°C.

Folgende Mittelwerte für die Ausbeuten wurden erreicht:

- 86% chemische Effizienz der Reduktion von Calciumoxid in metallisches Calcium in der Ionenquelle, bestimmt aus dem Gewichtsverlust der Pillen.
- 35% Separator-Effizienz, welche den Ionenquellen-Wirkungsgrad und die Transmission (~ 75%) umfaßt. Sie wurde aus dem Gewichtsverlust der CaO-Zr Pillen und dem ⁴⁰Ca-Stromintegral bestimmt.
- 50-80% Aufsammel-Effizienz; diese beinhaltet Verdampfen und Sputtern aus der Tasche, unvollständiges Herauslösen und Verluste bei der chemischen Aufbereitung bis Schritt 5 in Tabelle 3.1. Sie wurde aus dem ⁴⁰Ca-Stromintegral und dem CaCO₃-Gewicht ermittelt.
- 90% Effizienz der Nachreinigung, d.h. von Schritt 6 bis 8, welche aufgrund eines Defektes der verwendeten Waage nur geschätzt werden konnte.

Unter Berücksichtigung, daß die 14% nichtreduziertes Calciumoxid in den Pillen chemisch wiederaufbereitet werden können, beträgt die Gesamteffizienz 16-25%. Dabei war die Aufsammelleffizienz von 50%, die bei Probe #23 auftrat, unerwartet niedrig, was erneute Anreicherungen mit dieser Probe notwendig machte (siehe Abb. 3.20).

Die Ergebnisse aller Anreicherungsruns sind in Tabelle 3.2 dargestellt. Die für Probe #23 angegebenen Werte stellen die Summe der beiden Anreicherungs-Serien dar. Die Messungen dieser angereicherten Proben mit AMS erfolgte am 14UD-Pelletron Tandem in Rehovot (Israel) und wird im folgenden Kapitel 4 beschrieben.

Tabelle 3.2: Daten der angereicherten Proben

Proben- Nummer	Betriebs- tage	⁴⁰ Ca-Strom Integral [C]	Anreicherungs- faktor	CaCO ₃ - a) Gewicht [mg]
15	6	1750	24.9 ± 1,5	60
22	7	2040	48.4 ± 2,9	34
23	15	3560	49.3 ± 3,0	35
41	1	213	---	100

a) nach Schritt Nr. 5 aus Tabelle 3.1.

4. ^{41}Ca - AMS der angereicherten Proben

Die Messungen der ^{41}Ca -Konzentrationen der angereicherten Proben wurden am Tandem Accelerator Laboratory des Weizmann Institute of Science in Rehovot, Israel, durchgeführt. Dieser Tandem-Beschleuniger vom Typ 14UD-Pelletron und das Nachweissystem (Abb 4.1) werden im folgenden nur kurz beschrieben. Zusätzliche Informationen sind bei [Pau83] und [Fin84] zu finden.

Zusätzlich zu den in Tabelle 3.2 aufgeführten Proben wurden die folgenden gemessen:

- #42, bei der wie bei der Probe #41 ^{40}Ca angereichert und damit ^{41}Ca abgereichert worden war. Bei Probe #42 war die ^{41}Ca -Anreicherung am Oak Ridge National Laboratory (USA) erfolgt. Diese beiden Blank-Proben dienten zur Abschätzung der Höhe des Untergrund-Niveaus und der Kontamination der Proben mit ^{41}Ca während der Probenaufbereitung und in der Ionenquelle.
- #12, mit einer bekannten ^{41}Ca -Konzentration $C_{41} = 5,26 \times 10^{-12} \pm 10\%$, hergestellt durch kontrollierte Verdünnung aus einer Probe mit einem Verhältnis ^{41}Ca zu ^{40}Ca von 1,27 % (Ref. 7 bzw. 10 bei [Fin87]). Diese Probe #12 diente als Test und zur Kalibrierung.

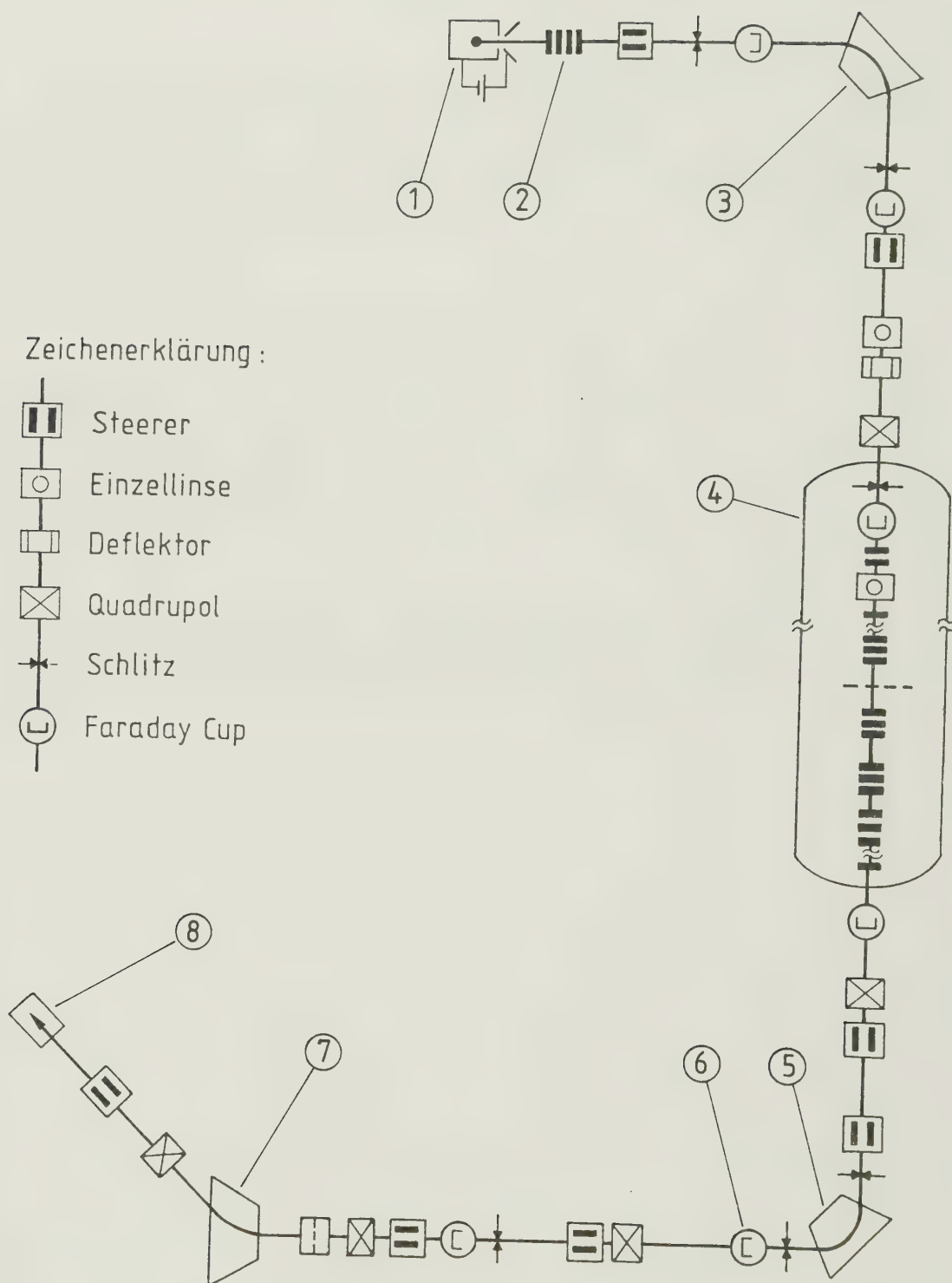


Abb. 4.1 Schematischer Aufbau des Rehovot 14UD-Pelletron Tandem mit 1) Ionenquelle, 2) Vorbeschleunigungsstrecke (max. 120 kV), 3) Injektionsmagnet (Ablenkwinkel 90° , Radius 45 cm), 4) Tandem-Tank, 5) Analysiermagnet (Ablenkwinkel 90° , Radius 125 cm), 6) Faraday-Cup mit Bezeichnung "UD", 7) Schaltmagnet, 8) AMS-Detektorsystem. Die 90° -Ablenkung durch den Injektions- und den Analysiermagneten erfolgt in der vertikalen Ebene.

4.1 Experimenteller Aufbau

4.1.1 Ionenquelle und Injektion

Die negativen Ionen für den Tandem-Beschleuniger wurden in einer Ionenquelle vom Typ HICONEX 834 (General Ionex Corporation, Ipswich, Mass., USA) produziert ([Bra77a], [Bra77b]). In der Ionenquelle wird mit einem heißen Wolfram-Ionisator ein Cs^{1+} -Strahl erzeugt, der beim Auftreffen auf eine Probe dort negative Ionen durch einen Rückwärts-Sputterprozess auslöst (Abb 4.2). Die Proben befinden sich auf einem Targetrad mit 12 Positionen, die ohne Belüften in den Fokus des Cs^{1+} -Strahls gedreht werden können.

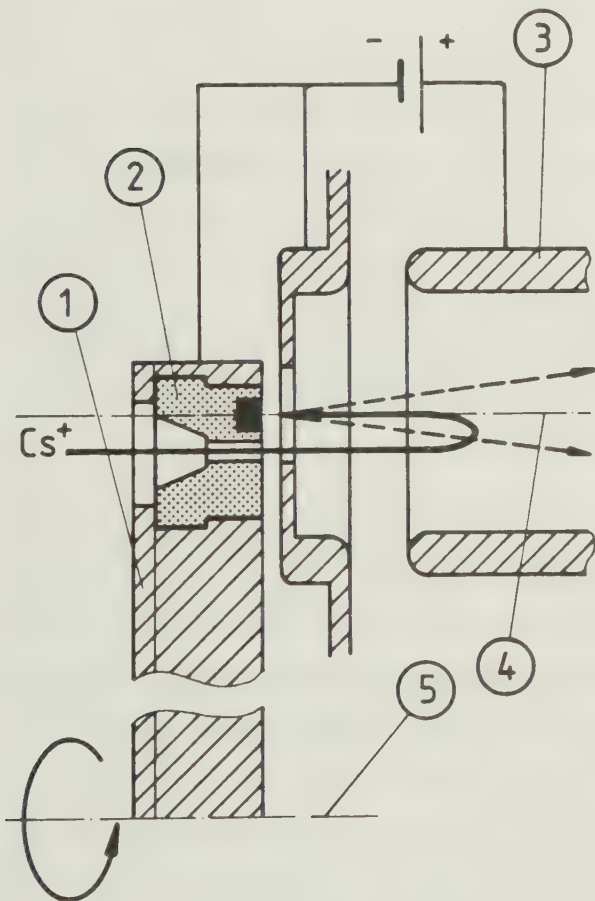


Abb. 4.2 Schematische Darstellung des Proben-Rads und der Geometrie des Rückwärts-Sputter-Prozesses. Die Komponenten sind: 1) Targetrad, 2) Konus mit der in Sputterposition befindlichen Probe, 3) Extraktionselektrode, 4) Achse der Ionenquelle, 5) Drehachse des Targetrades.

Wegen seiner negativen Elektronenaffinität ist das Ca^- -Ion metastabil und schwierig zu erzeugen. Aus diesem Grund werden negative Molekül-Ionen wie CaO^- , CaF^- und CaH_3^- vorgezogen ([Sha87], [Fin86]). Ein wichtiger Vorteil bei der Verwendung des CaH_3^- -Ion für ^{41}Ca -AMS ist die Unterdrückung von ^{41}K durch die Instabilität von KH_3^- entsprechend einem Verhältnis KH_3^- zu K^- von $\leq 10^{-8}$ [Rai81a]. Dies erst erlaubt die Durchführung von ^{41}Ca -AMS an Beschleunigern mit geringer Endenergie der Ionen, wie z.B. 84 MeV [Mid88a] d.h. 2,1 MeV/u im Vergleich zu 14,3 MeV/u bei den UNILAC-Messungen.

Bei früheren ^{41}Ca -Messungen mit dem Rehovot-AMS-System [Fin84], [Fin87] wurden die CaH_3^- -Ionen unter Besprühen von Calcium-Metall mit NH_3 -Gas gebildet. Die $^{40}\text{CaH}_3^-$ -Ströme erreichten bis zu 160 nA, hingen aber empfindlich vom NH_3 -Gasfluß ab, welcher außerdem die Ionenquelle korrodierte. Deshalb wurde bei den folgenden Messungen Calciumhydrid (CaH_2) als Ionenquellenfüllung verwendet, was die Besprühung mit NH_3 -Gas überflüssig macht. Die erzielbaren Ströme hängen stark von Verunreinigungen ab. Bei Vorversuchen mit kommerziellen, reinen CaH_2 wurden ebenfalls $^{40}\text{CaH}_3^-$ -Ströme von 150 nA erreicht. Bei den angereicherten Proben, deren chemische Behandlung wegen der geringen Probenmenge schwierig war, wurden dagegen nur 40-80 nA $^{40}\text{CaH}_3^-$ erzielt. Bei der Kalibrierungsprobe #12, die auch die größte Untergrundrate erzeugte, betrug der Ionenstrom teilweise sogar nur 11 nA.

Die angereicherten Proben wurden als CaCO_3 (nach Schritt Nr. 5 in Tabelle 3.1) von der GSI zum Racah Institute of Physics der Hebrew University in Jerusalem gebracht. Dort erfolgten für die angereicherten Proben die Nachreinigung (Schritt 6 bis 9 in Tabelle 3.1) und für alle Proben die Reduktion zu metallischem Calcium mit Hilfe von Zirkon (analog zu Abschnitt 3.4.2). Daraus wurde das Hydrid durch Erhitzen auf ca. 500°C , in einer Wasserstoff-Atmosphäre von ca. 750 Torr, gebildet. Dieses wurde nach Abkühlung in der Wasserstoff-Atmosphäre mit einem annähernd gleichen Volumenanteil Silber gemischt und in die Konen der Ionenquelle gepresst. Wegen der geringen Materialmengen wurde von jeder Probe nur jeweils ein Konus gefüllt. Dies mußte zur Vermeidung zusätzlicher Materialverluste möglichst rasch geschehen, weil Calciumhydrid sehr hygroskopisch ist und bei Anwesenheit von Wasser(dampf) Calciumhydroxid bildet. Aus dem gleichen Grund erfolgte die Lagerung und der Transport der Proben unter Vakuum.

Vor dem Einschub in den Tandem wurden CaH_3^- -Ionen beschleunigt durch U_v , die Summe von Extraktions- (-20 kV) und der Vorbeschleunigungsspannung (-90 kV) zwischen Extraktions-elektrode und Erdpotential und von dem Injektionsmagneten analysiert. Wegen der Verwendung von Molekülionen erhält man hier allerdings keine gute Isotopentrennung, denn der Ionenstrom bei der Masse 44 besteht neben $^{41}\text{CaH}_3^-$, auch aus $^{40}\text{CaDH}_2^-$, $^{42}\text{CaH}_2^-$, $^{43}\text{CaH}^-$ und $^{44}\text{Ca}^-$.

4.1.2 Tandem und Strahlführung

Im Tandem werden die negativen Ionen zunächst durch die positive Terminalspeisung U_T beschleunigt. Auf dem Potential U_T befindet sich eine Stripperfolie (2-3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Kohlenstoff), in der die Ionen zu mehrfach positiven umgeladen werden. Hierbei werden auch die Hydridmoleküle sowie Ionenstrahlen anderer Moleküle zerschlagen. Danach durchlaufen die

atomaren Ionen erneut die Terminalspannung U_T , wobei nun jedoch positive Ionen beschleunigt werden. Die Endenergie E der Ionen ist gegeben durch:

$$E = \frac{A}{M} eU_V + \left(\frac{A}{M} + q \right) eU_T - \Delta E_s \quad (4.1)$$

mit	A	Ionenmasse nach der Stripperfolie,
	M	Ionenmasse des Moleküls vor der Stripperfolie,
	q	Ladungszustand nach der Umladung,
	ΔE_s	Energieverlust in der Stripperfolie.

Der Term $A/M = 41/44$ berücksichtigt die dem ^{41}Ca -Ion fehlende Energie, die beim Zerschlagen der $^{41}\text{CaH}_3$ -Ionen in der Stripperfolie bei den Wasserstoff-Ionen verbleibt. Bei den Messungen dieser Arbeit war $U_V = 110 \text{ kV}$, $q = 9^+$, $U_T = 12 \text{ MV}$, $\Delta E_s \approx 60 \text{ keV}$ und somit $E = 119 \text{ MeV}$.

Die Stabilität der Terminalspannung ist für AMS-Messungen besonders wichtig, weil die Energie zum einen bei der Teilchenidentifikation eine wichtige Rolle spielt und zum anderen über die magnetische Steifigkeit die wichtige Meßgröße Transmission beeinflusst. Eine gute Stabilität der Terminalspannung wird üblicherweise mittels Schlitzstromstabilisierung erreicht. Dabei wird die Position und somit die Energie des Ionenstrahls am Austritt-Fokus des Analysier-Magneten über eine Strommessung an den Schlitzen kontrolliert. Aus der Differenz der Ströme beider Schlitze wird ein Rückkopplungssignal zur Steuerung der Terminalspannung generiert. Diese Art der Stabilisierung erfordert aber höhere Ströme als bei der ^{41}Ca -Messung zulässig sind. Deswegen wurde das Regelsignal von einem Voltmeter im Tandem abgeleitet, welches eine influenzierte Ladung proportional zur Terminalspannung mißt (Generating Voltmeter, GVM). Diese GVM-Stabilisierung erreicht allerdings nicht so geringe Schwankungsbreiten wie die Schlitzstromstabilisierung.

In der weiteren Strahlführung erfolgt mit Hilfe des Analysiermagneten eine Trennung der Calcium-Isotope mit hoher Auflösung (160 keV FWHM bei 130 MeV Ca-Ionen). Dieser Strahl wurde dann vom 45°-Schaltmagneten zum AMS-Detektorsystem gelenkt. Da das Kalium in der Ionenquelle unterdrückt wurde, ist die Intensität des Untergrundstrahles während der ^{41}Ca -Messung noch geringer als beim UNILAC. Dieser Untergrund besteht vor allem aus $^{28}\text{Si}^{6+}$ - und $^{32}\text{S}^{7+}$ -Ionen mit fast gleichen A/q wie $^{41}\text{Ca}^{9+}$, die als $^{28}\text{Si}^{16}\text{O}^-$ und $^{32}\text{S}^{12}\text{C}^-$ bis zum Stripper gelangen. Die Untergrundraten im Detektor betrugen bis 200 Hz für die Proben #15 und #22, 300-1000 Hz für die Proben #23, #41 und #42 sowie 3-10 kHz für die Probe #12. Um Totzeit-Verluste durch das Datenaufnahmesystem zu vermeiden, wurde die Aufzeichnung des größten Teils der Untergrundrate durch eine Schwelle im Energieverlustsignal unterbunden. Außerdem wurde die Aufzeichnung von zeitlich zu dicht aufeinanderfolgenden Ereignissen unterbunden, bei denen durch Summation der Impulse deren Höhe verfälscht wird (Pile up-Unterdrückung).

4.1.3 AMS-Detektorsystem

Das AMS-Detektorsystem zur eindeutigen Identifizierung der Ionen nach Masse A und Kernladungszahl Z bestand aus vier Komponenten (Abb. 4.3). Der Strahl traf zuerst auf eine Vieldrahtkammer gefüllt mit 2-3 Torr Isobutan. Die Vieldrahtkammer wurde mit großer Elektronenverstärkung ($\sim 10^6$) und schneller Zeitcharakteristik betrieben. Dieses Detektorsignal diente als Startsignal für die Flugzeitmessung.

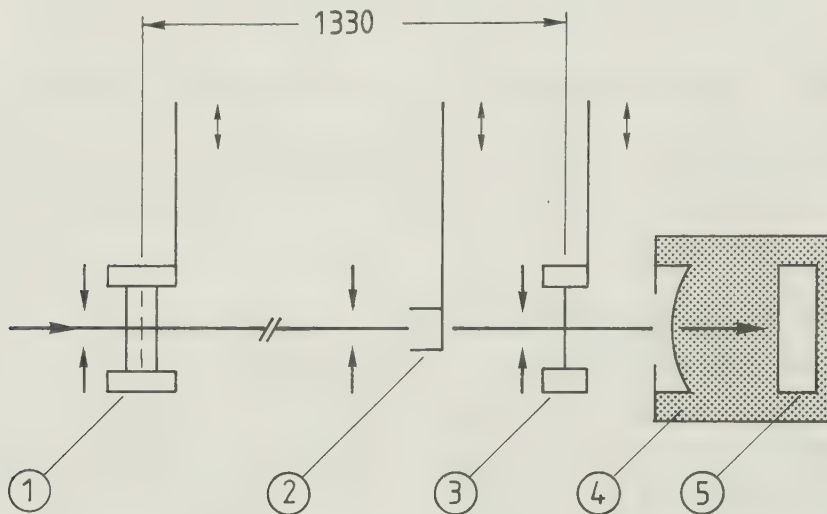


Abb. 4.3 Schematische Darstellung des AMS-Detektorsystems mit: 1) Vieldrahtkammer, 2) Faraday-Cup, 3) 13 μm dicker Oberflächensperrschicht-Detektor, 4) Gas-Ionisationskammer, 5) 150 μm dicker Oberflächensperrschicht-Detektor.

Das Stoppsignal für die Flugzeitmessung lieferte ein 13 μm dicker Oberflächensperrschicht-Detektor, der im Abstand von 1,3 m zum Vieldrahtkammer stand. Die Flugzeitmessung hatte eine Auflösung von 200 - 400 ps. Da einer Flugzeitdifferenz von z.B. 1,4 ns zwischen ^{41}Ca und ^{42}Ca konnten die verschiedenen Isotope gut getrennt werden. Gleichzeitig wurde mit diesem Detektor der Energieverlust ΔE_{Si} gemessen. Die Flächenbelegung lag bei 3,2 mg/cm^2 , wodurch etwa die Hälfte der Strahlenergie in diesem Detektor deponiert wurde.

Die Gas-Ionisationskammer wurde mit 26 Torr Isobutan betrieben, entsprechend einer Flächenbelegung von 620 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, zuzüglich 360 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ durch die Eintrittsfolie. Mit diesem Detektor wurde ein weiteres Energieverlust-Signal ΔE_{Gas} gemessen. Der Übergang zum folgenden 150 μm dicken Oberflächensperrschicht-Detektor erfolgte ohne Folie. Mit diesem wurde die Restenergie E_{Res} gemessen.

Die Vieldrahtkammer, der Faraday-Cup und der 13 μm dicke Oberflächensperrschicht-Detektor können aus dem Strahl geschwenkt werden. Wenn der Faraday-Cup (Teil Nr. 2 in Abb. 4.3) zur Strommessung in den Strahl fährt, schwenkt die Vieldrahtkammer automatisch aus dem Strahl.

4.2 Messungen

4.2.1 Meßverfahren

Während dem Nachweis von ^{41}Ca -Ereignissen in dem Detektor bestand der Strahl fast nur aus Untergrund-Ionen mit maximalen Raten von einigen kHz. Die Einstellung des Beschleunigers und die Bestimmung der Transmission erfolgte deshalb mit einem ^{40}Ca -Strahl, der dieselbe magnetischen Steifigkeit aufwies wie die ^{41}Ca -Ionen während deren Zählintervall. Die folgenden zwei Methoden der Feinjustage gewährleisteten die Reproduzierbarkeit der dazu nötigen Beschleuniger-Einstellungen:

1) Wechsel des Isotopes in der Injektion

Da die Strahlführung in der Injektion, abgesehen vom Injektionsmagneten, nur aus elektrostatischen Elementen aufgebaut ist, muß zu einem Wechsel der Ionenmasse nur dessen Feld verstellt werden. Die Feineinstellung erfolgte mit dem jeweiligen Strompeak über Optimierung des Stromes im Faraday-Cup am Ausgang des Analysiermagneten. Mit der Untergrund-Linie bei der Masse 44 ist dies auch für $^{41}\text{CaH}_3^-$ möglich. Die Identifizierung dieser Linie wird dadurch erleichtert, daß negative Ionen nur einfach geladen auftreten.

2) Änderung der Terminalspannung

Die Feineinstellung der Terminalspannung wurde ebenfalls durch Optimierung eines Strompeaks erzielt, allerdings im Faraday-Cup hinter dem Analysiermagneten und nur mit dem $^{40}\text{Ca}^{9+}$ -Strom, der aufgrund seiner Stromstärke von eventuellen Untergrund-Peaks unterscheidbar war. Dazu mußte das Feld des Analysiermagneten präzise auf berechnete Werte eingestellt werden, was mit einer NMR-Sonde auf 10^{-5} genau erfolgte.

Nach der ersten Einstellung des Beschleunigers mit ^{40}Ca -Ionen der entsprechenden magnetischen Steifigkeit, erfolgten in jeweils 5 Schritten die Einzelmessungen der verschiedenen Proben:

- 1) Die Injektion wurde eingestellt auf $^{40}\text{CaH}_3^-$ und die Terminalspannung auf das $\sqrt{41/40}$ -fache, so daß die Ionenoptik mit dem ^{40}Ca -Strahl überprüft und eventuell nachgestellt werden konnte. Danach wurde durch Strommessungen die Transmission T vom Ausgang des Analysiermagneten bis zum Detektor gemessen.
- 2) Die Messung der ^{40}Ca -Stromes erfolgte am Ausgang des Analysiermagneten, allerdings bei derselben Terminalspannung wie während der ^{41}Ca -Zählintervalle. Hierzu mußte der Analysiermagnet also verstellt werden. Die Terminalspannung wurde für die folgende Messung mit Hilfe der GVM-Stabilisierung konstant gehalten.
- 3) Umstellen der Injektion auf $A = 44$, d.h. auf $^{41}\text{CaH}_3^-$, und des Analysiermagneten auf ^{41}Ca . Danach startete das ^{41}Ca -Zählintervall, welches in der Regel 30 Minuten dauerte.

4) Messung des ^{40}Ca -Stromes wie in Schritt 2.

5) Messung der Transmission wie in Schritt 1.

Damit war eine Einzelmessung beendet und die nächste konnte beginnen. Falls kein Probenwechsel erfolgte, wurde mit Schritt 3 fortgefahren.

4.2.2 Transmission

Ein gravierender Unterschied zu den Messungen am UNILAC bestand im Ort der Transmissions- bzw der ^{40}Ca -Strom-Messung. Am 14UD-Pelletron erfolgte diese "nahe" am Detektor, d.h. bei großer Akzeptanz der restlichen Strahlführung. Die Transmission war folglich mit circa 75 % sehr hoch (Abb. 4.4), hatte eine plateauförmige Abhängigkeit (vergleiche Abschnitt 2.4.2) gegenüber kleinen Fehleinstellungen und war deshalb zeitlich stabil. Die zum Vergleich mit der bisher für ^{41}Ca am UNILAC erreichten Transmission von maximal 0,4% geeignete Gesamttransmission lag bei 5,5 - 9% .

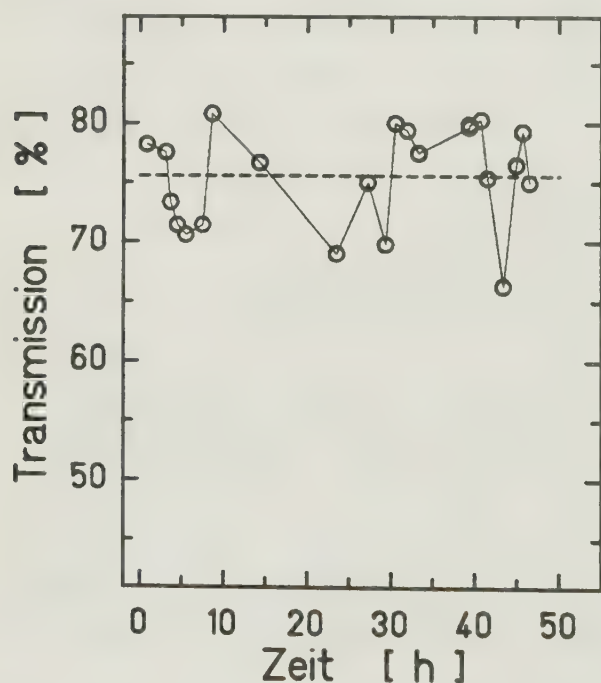


Abb. 4.4 Mit $^{40}\text{Ca}^{9+}$ -Ionen gemessene Transmission vom Faraday-Cup UD (Abb. 4.1) bis zum Detektor-Faraday-Cup (Abb. 4.3). Die gestrichelte Linie stellt den Mittelwert dar, der dargestellte Zeitraum umfasst alle Messungen.

Neben den regelmässigen Messungen wurde zur Kontrolle der zeitlichen Stabilität von Strom und Transmission die ^{42}Ca -Zählrate herangezogen. Der wahrscheinlichste Weg der ^{42}Ca -Ionen zum Detektor durchläuft folgende Etappen: Injektion als $^{42}\text{CaH}_2$, Umladung zu $^{42}\text{Ca}^{8+}$ in der Stripperfolie und eine weitere Umladung zu $^{42}\text{Ca}^{9+}$ in einem Restgasstoß während der Beschleunigungsstrecke. Die zweite Umladung führt zu einem breiten Energiespektrum, aus dem der Bereich mit dem "richtigen" $B\rho$ durch den Analysiermagneten herausgefiltert wird. Eine konstante ^{42}Ca -Rate ist daher ein Indiz für konstante Bedingungen und ein Aussetzen

der ^{42}Ca -Rate zeigt eine Unterbrechung des ^{41}Ca -Zählintervalls an. Weitergehende Rückschlüsse sind aber wegen der Abhängigkeit der ^{42}Ca -Rate vom Restgasdruck im Tandem und vom Verhältnis der Stromausbeuten CaH_3 zu CaH_2 nicht zulässig.

4.2.3 Bestimmung der ^{41}Ca -Ereignisse

Jedes zur weiteren Analyse zugelassene Ereignis bestand aus den vier gemessenen Signalen:

- Flugzeit,
- Energieverlust in dem $13\mu\text{m}$ Oberflächensperrschicht-Detektor (ΔE_{Si}),
- Energieverlust in der Gas-Ionisationskammer (ΔE_{Gas}) und
- Restenergie in dem $150\mu\text{m}$ Oberflächensperrschicht-Detektor (E_{Res}).

Mit diesen vier Parametern ist im allgemeinen eine eindeutige Identifizierung der ^{41}Ca -Ereignisse nach A und Z möglich. Schon in dem Scatterplot der Summenenergie ($\Delta E_{\text{Si}} + E_{\text{Res}}$) gegen die Flugzeit können die Nuklide identifiziert werden (Abb. 4.5). Allerdings erfordert die genaue Zuordnung der Ausläufer, z.B. der Ereignisse zwischen den ^{41}Ca - und ^{40}Ca -Peak in Abb. 4.5 eine weitergehende Analyse. Die dazu notwendigen Bedingungen (Fenster) für alle vier Parameter erhält man üblicherweise aus den Messungen der Kalibrierungsprobe mit so vielen ^{41}Ca -Ereignissen, daß diese sich aus eventuellen Untergrund klar hervorheben. Das war bei den hier beschriebenen Messungen nicht sinnvoll:

- 1) Die Rate der ^{41}Ca -Ereignisse der Kalibrierungsprobe war gering, weil der erzielte $^{40}\text{CaH}_3$ -Strom aus dieser Probe teilweise nur 11 nA betrug. Die ^{41}Ca -Konzentration war aber, ausgehend von 50 - 100 nA $^{40}\text{CaH}_3$ -Strom, möglichst gering gewählt worden, um eine Kontamination der anderen Proben mit ^{41}Ca , die auf demselben Targetrad (Abb. 4.2) montiert waren, ausschließen zu können.
- 2) Die Fenster mußten sehr eng gesetzt werden, da bei diesen Messungen Untergrundereignisse nicht vernachlässigbar waren. Bei engen Fenstern aber ist eine stetige Kontrolle der richtigen Position notwendig, die mit gelegentlichen Messungen der Kalibrierungsprobe nicht gewährleistet ist.
- 3) Während der Strahlzeit mußten defekte Teile der Meßelektronik ausgetauscht werden. Dies hätte jedesmal eine neue Messung der Kalibrierungsproben zur Festlegung des ^{41}Ca -Fensters erforderlich gemacht.

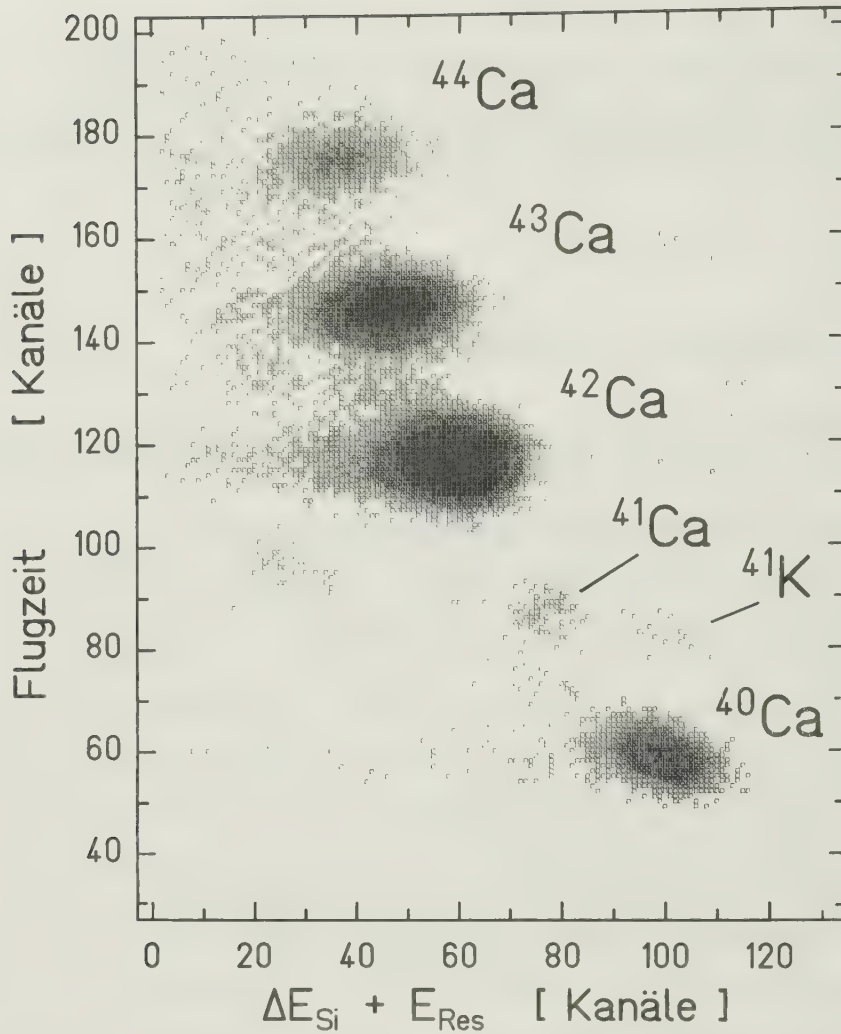


Abb. 4.5 Ereignisse aus einer der Einzelmessungen mit Probe #23, aufgetragen als "Scatterplot" über einer $(\Delta E_{Si} + E_{Res})$ gegen Flugzeit-Ebene. Die verschiedenen Isotope sind in der Abbildung gekennzeichnet, wobei die Anzahl der Ereignisse für ^{40}Ca , ^{42}Ca und ^{43}Ca 5 175, 119 002 und 26 930 betrug. Der Nullpunkt der Achsen ist gegenüber der Datenaufnahme verschoben.

In einem ersten Analyseschritt wurden deshalb die Schwerpunkte und Breiten der Peaks von ^{43}Ca , ^{42}Ca und ^{40}Ca bezüglich aller vier Parameter für jede Einzelmessung bestimmt. Aus diesen Werten wurden Fenster für ^{41}Ca bezüglich der Flugzeit und ΔE_{Gas} durch Interpolation gewonnen und damit als Bedingungen $(\Delta E_{Si}, E_{Res})$ -Scatterplots (Abb. 4.6) erzeugt. Aufgrund dieser Fenster ist die Zahl der ^{41}K -Ereignisse z.B. in Abb. 4.6a (bei E_{Res} -Kanal 50) niedriger als in Abb. 4.5, die die gleiche Messung darstellt. Zur Bestimmung der ^{41}Ca -Ereignisse wurden nun zusätzliche Fenster in der $(\Delta E_{Si}, E_{Res})$ -Ebene gesetzt (durchgezogene Linien in Abb. 4.6). Die Zentren dieser Fenster resultieren ebenfalls aus der oben genannten Interpolation, die Form wurde an das in Abb. 4.6a gezeigte Spektrum angepasst.

In manchen der Scatterplots, am extremsten aber in Abb. 4.6e, zeigen sich über einen weiten (ΔE_{Si} , E_{Res})-Bereich verteilte Ereignisse, die zum Teil innerhalb der ^{41}Ca -Fenster liegen. Die Ursache für diese Ereignisse ist unverstanden, es kann sich aber nicht um Produkte aus Kernreaktionen handeln. Bei den in Frage kommenden Reaktionspartnern ist die Strahlenergie im Schwerpunktsystem zu gering um die Schwelle aus Coulomb-Abstoßung und Q-Wert zu überwinden. Außerdem war die Strahlintensität um mehrere Größenordnungen geringer als bei den UNILAC-Messungen.

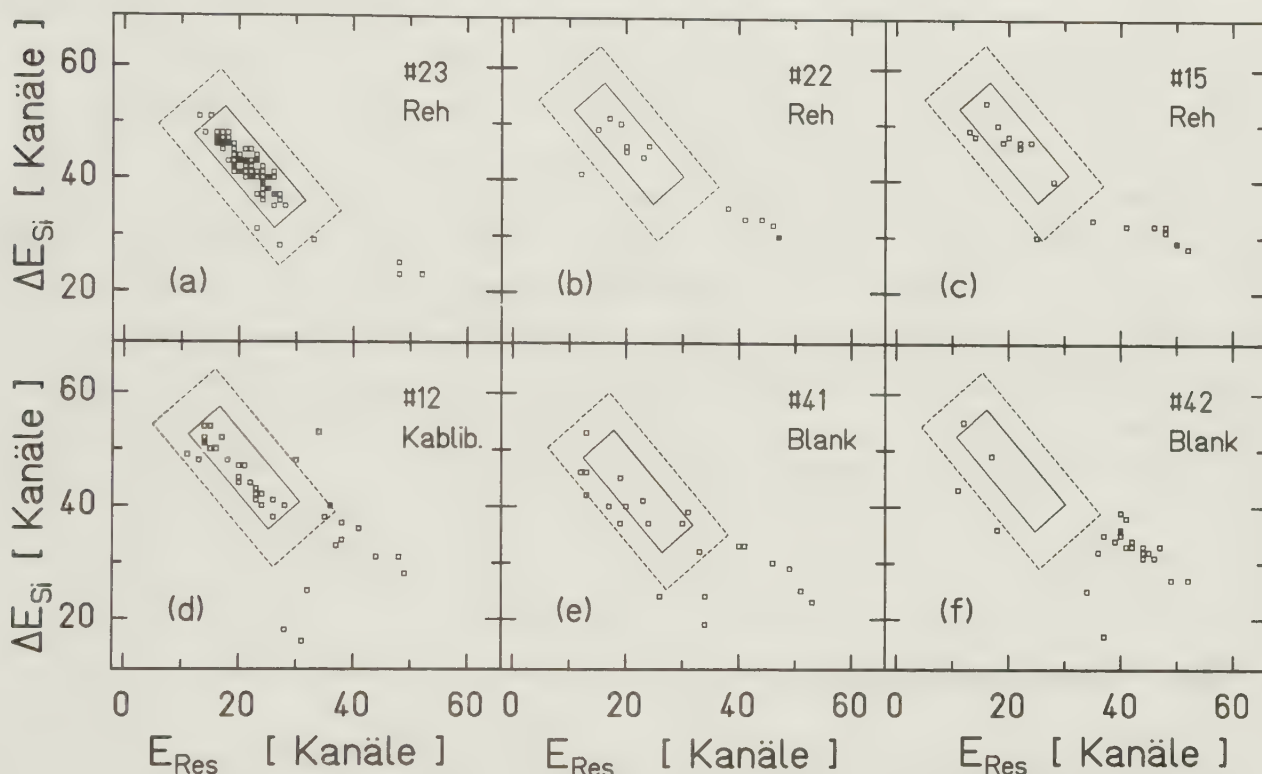


Abb. 4.6 Beispiele für ^{41}Ca -Ereignisse aus Einzelmessungen, die als Scatterplot über einer (E_{Res} , ΔE_{Si})-Ebene aufgetragen sind und die mit Bedingungen in Flugzeitmessung und ΔE_{Gas} erzeugt wurden. Die zugehörigen Proben sind in der Abbildung angegeben. Die ^{41}Ca -Fenster sind mit durchgezogene Linien, die Untergrund-Fenster mit gestrichelte Linien eingetragen (siehe Text). Für diese Darstellung wurden je zehn Kanäle zusammengefasst und der Nullpunkt der Achsen verschoben.

Um die Zahl der Ereignisse im ^{41}Ca -Fenster P bezüglich möglicher Untergrund-Ereignisse zu korrigieren, wurden Untergrund-Fenster symmetrisch zu den ^{41}Ca -Fenstern gesetzt (gestrichelte Linien in Abb. 4.6). Als Untergrund im ^{41}Ca -Fenster wurde die Zahl der Ereignisse B innerhalb der Untergrund-Fenster, minus P angenommen. Die Größe dieser Fenster wurde so festgesetzt, daß bei den Messungen der Blank-Proben die Zahl der Ereignisse B der Zahl P entspricht. Die resultierende Fläche für die Bestimmung von B ist doppelt so groß wie die der ^{41}Ca -Fenster. Die auf diese Weise ermittelten Werte sind in Tabelle 4.1 zusammengestellt.

Probe	Ereignisse		$T \times I$	t
	P	B	[nA]	[min]
#12 (Kalibrierungsprobe)	20	3	10,6	30,0
	23	4	11,7	29,0
	21	3	11,8	34,9
#15 (Reh, 1987)	8	2	49,6	32,4
	10	4	37,9	19,2
#22 (Reh, ≤ 1950)	4	0	12,1	30,0
	7	0	15,0	33,2
	10	4	10,3	60,2
	8	1	8,2	46,0
#23 (Reh, 1905)	30	8	36,0	29,9
	51	5	40,3	30,2
	25	7	34,9	20,3
	70	4	34,7	40,7
#41 (Blank)	14	16	28,3	110,1
#42 (Blank)	3	3	37,9	88,9

Tabelle 4.1: Ergebnisse der ^{41}Ca -Messungen. Für die Kalibrierungsprobe und die Proben aus Rehknochen sind die Ergebnisse der Einzelmessungen aufgeführt, für die beiden Blank-Proben jeweils nur das Gesamtergebn der 3 Einzelmessungen.

4.2.4 ^{41}Ca -Konzentrationen

Die ^{41}Ca -Konzentrationen der Messung wurden berechnet nach

$$\frac{{}^{41}\text{Ca}}{\text{Ca}} = \frac{(P - B)}{\overline{T \times I} \cdot t} \cdot q \cdot e \cdot IS \cdot C_1 \cdot C_2 \tag{4.3}$$

- mit
- t

q

e

IS

$\overline{T \times I}$

C_1

C_2
- ^{41}Ca -Meßzeit,

Ladungszustand der ^{40}Ca -Ionen ($q = 9^+$),

Elementarladung,

^{40}Ca -Isotopenhäufigkeit,

Mittelwert des Produktes von T und I ,

Korrekturfaktor (siehe Text) und

weiterer Korrekturfaktor (siehe Text).

Der Korrekturfaktor C_1 berücksichtigt die Transmissionsverluste durch Kleinwinkelstreuung in der Vieldrahtkammer. Diese sind nicht in der Transmission T_{UD} enthalten, da zur Strommessung mit dem Detektor-Cup die Vieldrahtkammer aus dem Strahl gezogen werden mußte. C_1 wurde aus dem Verhältnis der Gesamtzählraten in der Vieldrahtkammer und im 150 μm dicken

Oberflächensperrschicht-Detektor bestimmt und lag im Bereich von 2,9 bis 3,5. Die Unsicherheit von $(\overline{T \times I} \times C_1^{-1})$ wurde zu $\pm 30 \%$ geschätzt. Der Korrekturfaktor C_2 berücksichtigt sowohl die Auswirkungen der engen Fenster in ΔE_{Gas} und der Flugzeit, als auch einen systematischer Fehler im Faktor C_1 . C_2 wurde aus der Messung der Kalibrierungsprobe #12 bestimmt und beträgt $C_2 = 1,20 \pm 0,31$. Die ursprünglichen ^{41}Ca -Konzentrationen C_{41} der angereicherten Rehknochen (Tabelle 4.2) ergeben sich durch Division der gemessenen ^{41}Ca -Konzentrationen durch die Anreicherungsfaktoren.

Der Untergrundabzug ist insofern nicht unproblematisch, da hierbei für den bezüglich seiner Isotopen-Zusammensetzung nicht näher identifizierten Untergrund vorausgesetzt wird, daß er in allen Spektren nach dem gleichen Profil verteilt ist. Bei Verzicht auf diese Korrektur würde sich auch der Meßwert der Kalibrierungsprobe ändern und damit der Korrekturfaktor C_2 auf $1,01 \pm 0,24$. Dies würde somit einen relativen Abzug bedeuten mit einem für alle Proben gleichen Prozentsatz, der wie der Vergleich von z.B. Abb. 4.6 c mit e zeigt, sicherlich nicht gerechtfertigt ist. Da aber in der AMS üblicherweise kein Untergrund-Abzug vorgenommen wurde, wurde eine solche Auswertung zu Vergleichszwecken zusätzlich durchgeführt (Tabelle 4.2). Es zeigt sich hierbei, daß die resultierenden ^{41}Ca -Konzentrationen der Rehknochen aus beiden Auswertungen im Rahmen der Fehler gleich sind.

Tabelle 4.2: Resultierende ^{41}Ca -Konzentrationen bei Auswertung mit und ohne Untergrundabzug. Für die Kalibrierungsprobe und die Proben aus Rehknochen sind die Ergebnisse der Einzelmessungen aufgeführt, für die beiden Blank-Proben jeweils nur das Gesamtergebn der 3 Einzelmessungen.

Probe (Ursprung)	ohne Untergrundabzug			mit Untergrundabzug		
	C_{41} (AMS)		C_{41} (original) ^{c)} $\times 10^{14}$	C_{41} / C_2 (AMS)		C_{41} (original) ^{c)} $\times 10^{14}$
	einzel ⁿ ^{a)} $\times 10^{13}$	gesamt ^{b)} $\times 10^{13}$		einzel ⁿ ^{a)} $\times 10^{13}$	gesamt ^{b)} $\times 10^{13}$	
# 12 (Kalibrierungsprobe)	46 $\pm$ 17	52 $\pm$ 11	526 $\pm$ 53 ^{d)}	39 $\pm$ 16	44 $\pm$ 11	526 $\pm$ 53 ^{d)}
	50 $\pm$ 18			41 $\pm$ 17		
	69 $\pm$ 26			60 $\pm$ 24		
# 15 (Reh, 1987)	3,7 $\pm$ 1,7	4,5 $\pm$ 1,6	1,8 $\pm$ 0,7	2,8 $\pm$ 1,7	3,3 $\pm$ 1,6	1,6 $\pm$ 0,9
	11,1 $\pm$ 4,8			6,7 $\pm$ 4,7		
# 22 (Reh, ≤ 1950)	8,8 $\pm$ 5,2	11,7 $\pm$ 2,9	2,4 $\pm$ 0,6	8,8 $\pm$ 5,2	10,3 $\pm$ 2,9	2,6 $\pm$ 1,0
	11,6 $\pm$ 5,6			11,6 $\pm$ 5,6		
	12,9 $\pm$ 5,6			7,7 $\pm$ 5,4		
	15,4 $\pm$ 7,2			13,5 $\pm$ 7,1		
# 23 (Reh, 1905)	21,2 $\pm$ 7,5	28,3 $\pm$ 5,0	5,7 $\pm$ 1,1	15,6 $\pm$ 6,4	23,0 $\pm$ 4,5	5,6 $\pm$ 1,9
	35 $\pm$ 12			31,4 $\pm$ 10,7		
	29 $\pm$ 11			21,0 $\pm$ 9,4		
# 41 (Blank)	40 $\pm$ 13	2,8 $\pm$ 1,0	0 ^{e)}	38,0 $\pm$ 12,4	23,0 $\pm$ 4,5	5,6 $\pm$ 1,9
	---			---		
# 42 (Blank)	---	0,5 $\pm$ 0,4	0 ^{e)}	---	$\leq 1,3$	0 ^{e)}
	---			---		

a) Der Fehler dieser Werte resultiert aus dem statistischen Fehler $\sqrt{P + B}$ und einer geschätzten Unsicherheit von 30% für $(\overline{T} \times I C_1)$.
b) Diese Werte resultieren aus gewichteter Mittelung [Par84].
c) Errechnet unter Berücksichtigung des Anreicherungsfaktors (Tabelle 3.2) und des Faktors C_2 .
d) Wert aus kontrollierter Verdünnung einer Probe mit einem Verhältnis ^{41}Ca zu ^{40}Ca von $1,27 \times 10^{-2}$.
e) Wert aufgrund der Abreicherung von ^{41}Ca .

4.3 Diskussion

Die z.Zt. noch sehr großen Fehler der $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$ -Meßwerte könnten im Prinzip mit relativ geringem Aufwand reduziert werden. Vor allem die folgenden Verbesserungen des AMS-Systems sind "einfach" in dem Sinne, daß keine Entwicklungsarbeit nötig ist, sondern "nur" der Stand der Technik umgesetzt werden muß.

Neben dem statistischen Fehler resultiert ein Teil der Meßunsicherheit aus der Bestimmung von $\overline{T \times I}$ und des Korrekturfaktors C_1 . Der Anteil der Transmission T an dieser Unsicherheit ist gering, da diese sehr stabil war (Abb. 4.4). Die Unsicherheit in der Strommessung ist dagegen nicht unerheblich und kann dadurch reduziert werden, daß der $^{40}\text{CaH}_3$ -Strom gleichzeitig mit der ^{41}Ca -Messung bestimmt wird. Dazu müßte ein nichtzentraler Faraday-Cup am Ausgang des Injektionsmagneten installiert werden.

Der statistische Fehler könnte im Prinzip durch einen größeren Anreicherungsfaktor reduziert werden, dies bedeutet jedoch größeren Arbeitsaufwand bei der Anreicherung. Deswegen sollten vorher die Möglichkeiten der Verbesserung des AMS-Systems ausgeschöpft werden. Allein durch Vermeidung der Strahlaufstreuung in der Vieldrahtkammer und damit der Transmissionsverluste würde die ^{41}Ca -Zählrate um den Faktor $C_1 \sim 3$ erhöhen. Dazu müßte die Vieldrahtkammer durch einen Startdetektor mit geringerer Flächenbelegung ersetzt werden, z.B. durch eine Multichannelplate- Anordnung, die die Sekundärelektronen von einer dünnen Folie mißt (siehe z.B. [Sch83]).

Eine Erhöhung der Empfindlichkeit um 2 Größenordnungen ist von der Installation einer Ionenquelle des von [Sha87] beschriebenen Typs zu erwarten. Diese Ionenquelle produziert bis zu $10 \mu\text{A}$ $^{40}\text{CaH}_3$ und wurde von [Mid88a] und [Kut88a] bereits erfolgreich eingesetzt. Falls mit dem Strom auch die Zahl der Untergrund-Ionen anwächst, wären weitere Maßnahmen erforderlich, wie der Einbau eines Filters gegen z.B. die $^{28}\text{Si}^{6+}$ - und $^{32}\text{S}^{7+}$ -Ionen. Wenn dieser Filter (z.B. ein Wien-Filter) auch den ^{42}Ca -, ^{43}Ca - und ^{44}Ca -Untergrund reduziert, wäre die Anreicherung zeitgenössischer Proben unnötig und könnte auf Proben mit niedriger ^{41}Ca -Konzentrationen beschränkt werden.

Eine Bestätigung der Fehlerabschätzung des Anreicherungsfaktors steht noch aus, da eine bereits angereicherte Probe aus neutronenaktiviertem Material mit bekannter ^{41}Ca -Konzentration bisher noch nicht gemessen werden konnte. Eine derartige Bestätigung wäre insofern wichtig, da kürzlich eine Messung mit einer Probe aus demselben Knochen wie Probe #23, aber ohne Anreicherung, am Argonne National Laboratory erfolgte [Kut88b]. In dieser Messung wurden keine ^{41}Ca - Ereignisse beobachtet, was einer Obergrenze von $^{41}\text{Ca}/\text{Ca} \leq 9 \times 10^{-15}$ bei 95% statistischer Sicherheit (confidence level) entspricht. Die Diskrepanz zwischen diesem Ergebnis und

dem in der vorliegenden Arbeit gemessenen Wert von $(56 \pm 19) \times 10^{-15}$ ist außerhalb der Ungenauigkeiten beider Messungen und ist bislang unverstanden. Eine Erklärung bestünde in einer während der chemischen Aufbereitung "eingeschleppten" Kontamination der GSI-Proben mit neutronenaktiviertem Calcium. Dagegen sprechen zum einen die durchgeführten Vorsichtsmaßnahmen (neue Gefäße, neue Werkzeuge, etc.), zum anderen die niedrige ^{41}Ca -Konzentration der Blank Probe #41, die die gleiche chemische Aufbereitung im gleichen Labor erfuhr. Andererseits wäre eine mögliche Fehlerquelle bei den Messungen von [Kut88b] in Instabilitäten im Beschleuniger-System zu suchen. Ein "Monitor"-Strahl wie ^{42}Ca bei der hier beschriebenen Messung stand nämlich bei [Kut88b] nicht zur Verfügung, da der in Argonne benutzte Linearbeschleuniger - ähnlich wie der UNILAC - als guter Massenfilter wirkt. Instabilitäten dieses Ausmaßes sind bei dem verwendeten Beschleuniger-System allerdings nicht üblich, wie vier Messungen desselben Knochens (Kuh, Illinois, 1987) zeigen, die innerhalb des Fehlers von $\pm 30\%$ übereinstimmten.

Abb. 4.7 zeigt einen Vergleich der in dieser Arbeit gemessenen ^{41}Ca -Konzentrationen mit den anderen inzwischen vorliegenden Meßwerten von ^{41}Ca -Konzentrationen in Knochen. Die große Streuung der Werte läßt die Diskrepanz der mit einer identischen Probe erzielten Ergebnisse aus Argonne bzw. GSI-Rehovot in einem anderen Licht erscheinen; möglicherweise sind diese Unterschiede zumindest teilweise auf bisher noch ungeklärte AMS-Probleme zurückzuführen. Wie im nächsten Kapitel gezeigt wird, können die natürlichen, zeitgenössischen ^{41}Ca -Konzentrationen (auch in Knochen aus einer Region) stark variieren. Es ist aber eine gewisse Skepsis angebracht, ob dies die alleinige Ursache für die in Abb. 4.7 dargestellten Variation ist, insbesondere angesichts der Korrelationen zwischen den ^{41}Ca -Konzentrationen und den zur Messung verwendeten AMS-Systemen.

Die hier beschriebene Methode zur Anreicherung kann helfen, diese Probleme zu überwinden, indem sie den Kreis der Beschleuniger erweitert, an denen ^{41}Ca -AMS natürlicher Proben durchgeführt werden kann. Im Unterschied zu den Messungen von [Hen87], bei denen die nur begrenzt verfügbaren Calutron-Massenseparatoren des Oak Ridge National Laboratory (USA) benutzt wurden, kann diese Methode an vielen, bereits vorhandenen Massenseparatoren angewandt werden. Außerdem ist die notwendige Probenmenge und der Aufbereitungsaufwand viel geringer als in der Arbeit von [Hen87], bei der 100 g metallisches Calcium eingesetzt wurden: Es würde z.B. eine Probenmenge von Calciumoxid mit 1 g Calciumgehalt bei einem Anreicherungsfaktor von 25 (Abschnitt 3.4.2) ausreichen. Abgesehen von der Klärung der angeführten Probleme gibt es viele weitere Anwendungen für eine ^{41}Ca -Anreicherung, denn bei dem gegenwärtigen Stand der ^{41}Ca -AMS sind teilweise sogar zeitgenössische ^{41}Ca -Konzentrationen nicht mit zufriedenstellender Genauigkeit meßbar.

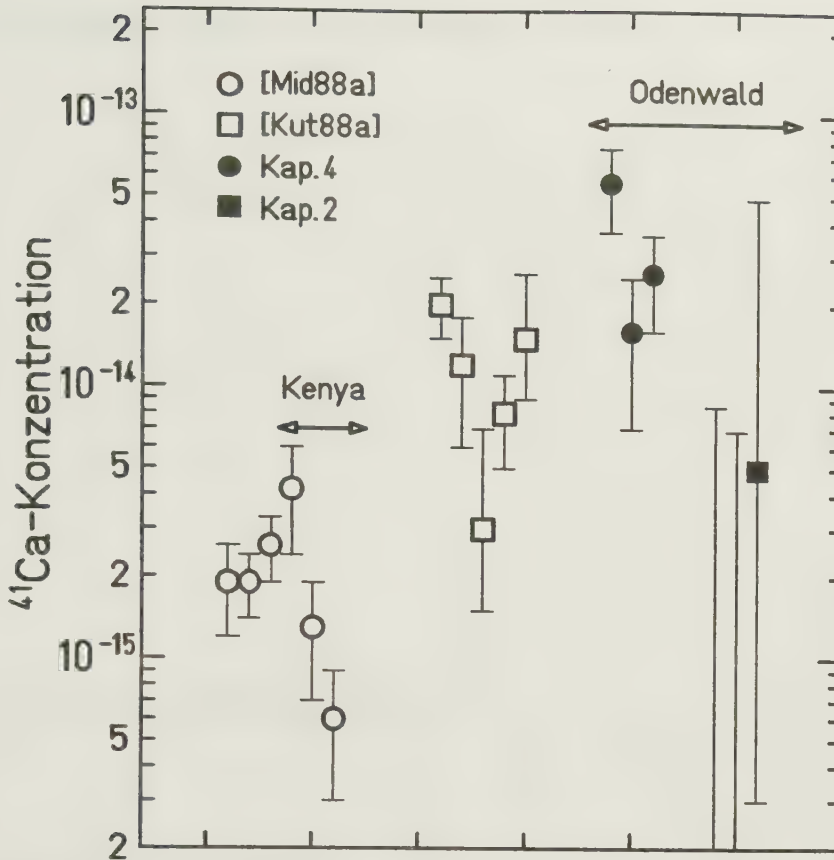


Abb. 4.7 Bislang gemessene ^{41}Ca -Konzentrationen von zeitgenössischen Knochen. Die beiden Gruppen der Meßwerte, von denen mehr als eine Probe aus einer Region stammen (Turkana-See, Kenya, [Mid88a] und Odenwald, BRD, diese Arbeit) sind durch Pfeile gekennzeichnet. Die verschiedenen Symbole stehen für die verschiedenen AMS-Systeme: am FN Tandem (Pennsylvania, USA) [Mid88a], am ATLAS-Beschleuniger (Argonne, USA) [Kut88a], am 14UD-Pelletron Tandem d.h. die Messungen nach Anreicherung und am UNILAC. Die Werte ohne Symbol sind die Obergrenzen, deren Messung in Kapitel 2 beschrieben wurde. Nicht dargestellt wurde die Messung des Odenwald-Rehknöchens von [Kut88b], die in bisher nicht geklärtem Widerspruch zu der Messung dieser Arbeit steht.

5. Produktion von ^{41}Ca in der Natur

Für die ^{41}Ca -Altersbestimmung ist die Variationsbreite der zeitgenössischen ^{41}Ca -Konzentrationen relevant. Durch Rechnungen, die auf experimentellen Werten basieren, wird in diesem Kapitel gezeigt, daß allein die unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen von Böden zu erheblichen Schwankungen der ^{41}Ca -Produktion führen können (Abschnitt 5.3). Die Folgerungen für die Altersbestimmung werden im Abschnitt 5.4 diskutiert. Als interessante Anwendungsmöglichkeit von ^{41}Ca -AMS folgt aus diesen Berechnungen die Messung von Erosionsraten mit ^{41}Ca (Abschnitt 5.5).

5.1 Neutronenproduktionsraten

5.1.1 Relevante Kernreaktionen

Die Produktion von ^{41}Ca auf der Erde erfolgt hauptsächlich in der Erdoberfläche, und zwar durch Neutroneneinfang aus ^{40}Ca mit einem Wirkungsquerschnitt von $\sim 0,4$ b, wobei die beteiligten Neutronen überwiegend aus der Wechselwirkung von Höhenstrahlung und Atmosphäre oder Erdoberfläche stammen. Die primäre Höhenstrahlung selbst enthält keine Neutronen, sondern besteht zu ca. 84 % aus Protonen, 15 % α -Teichen und 1 % schweren Atomkernen [And72]. Obwohl die Höhenstrahlung und damit die Neutronenproduktion in der oberen Atmosphäre 1000-fach intensiver ist, wird ^{41}Ca dort nur in vernachlässigbar kleinem Umfang erzeugt, da dort die Konzentrationen geeigneter Targetatome wie Argon ($^{40}\text{Ar}(\alpha,3n)^{41}\text{Ca}$) oder Krypton (Spallation) zu gering sind. Analoges gilt für alternative Reaktionsmechanismen in der Erdoberfläche z. B. für $^{45}\text{Sc}(\mu,4n)^{41}\text{Ca}$ oder Spallation, bei denen sowohl die effektive Zahl der Targetatome als auch die Wirkungsquerschnitte niedriger sind. Die in den oberen Schichten der Erdoberfläche, d.h. bis zu Tiefen von mehreren 100 m, wichtigsten Prozesse der Neutronenproduktion sind (Abb. 5.1) :

- Proton- und Neutron-induzierte Reaktionen: Bei diesen Prozessen gibt der Atomkern nach Wechselwirkung mit der Nukleonenkomponente der Höhenstrahlung einen Teil seiner Anregungsenergie durch Emission von Neutronen ("Abdampfung") ab, d.h. über (p,xn)- bzw. (n,xn)-Reaktionen mit $x = 1,2,3,\dots$

- Müoneneinfang: Ein Teil der negativen Müonen aus der Sekundärkomponente der Höhenstrahlung wird nach Abbremsung von Atomkernen eingefangen und produziert Neutronen in (μ, xn) -Reaktionen.
- Bremsstrahlung: Die Bremsstrahlung von schnellen Müonen kann über (γ, xn) -Reaktionen Neutronen erzeugen. Die Beiträge dieses Prozesses sind gering (Abb 5.1) und werden im folgenden ohne weitere Erläuterung von [Fab88] übernommen.
- natürliche Radioaktivität: Diese von der Höhenstrahlung unabhängige Quelle von Neutronen ist vor allem in größeren Tiefen relevant. Der überwiegende Teil dieser Neutronen resultiert nicht aus der Spontanspaltung schwerer Elemente, sondern aus (α, n) -Reaktionen.

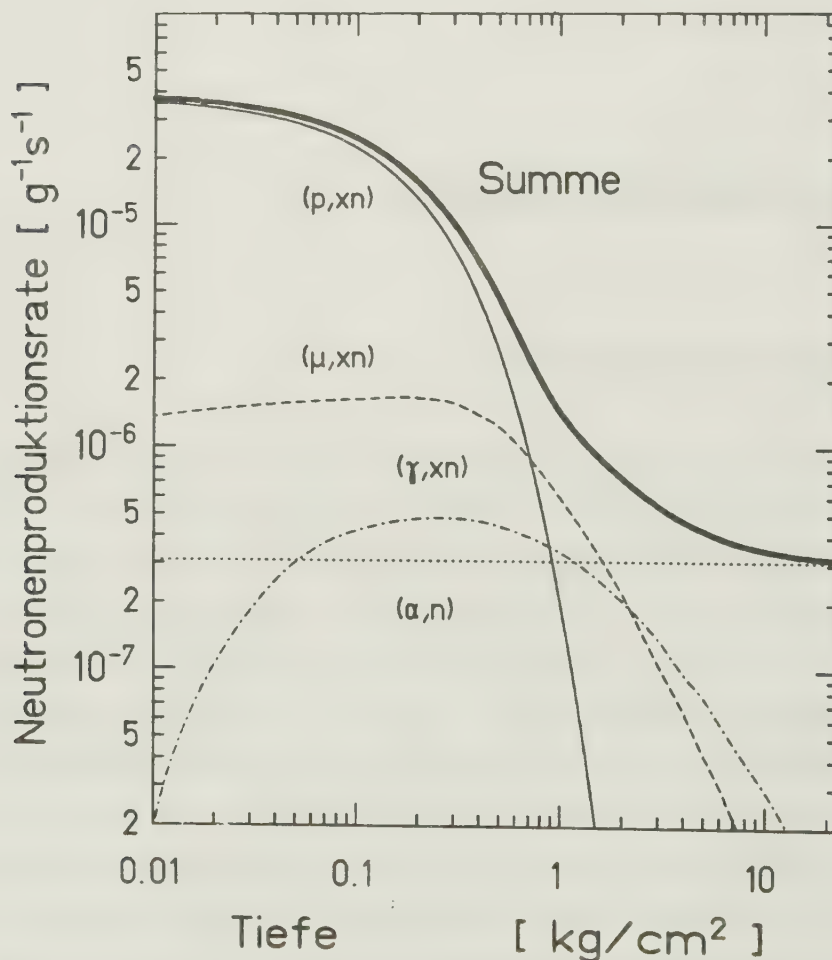


Abb. 5.1 Beiträge der verschiedenen Prozesse zur Neutronenproduktionsrate in der Erdoberfläche. Die Berechnungen wurden durchgeführt für ein Gestein mit Standard- Zusammensetzung und für einen Standort auf Meeresspiegelhöhe bei einer geomagnetischen Breite $\Lambda > 60^\circ$. Die Standard- Zusammensetzung entspricht der mittleren Häufigkeit der Elemente in der horizontalen Erdkruste nach [Mic79].

Für die ^{41}Ca -Produktion besteht kein prinzipieller Unterschied zwischen Böden und Gesteinen. Quantitativ aber zeigen sich Unterschiede, da Böden und Gesteinen verschiedene chemische Zusammensetzungen, Wassergehalt (bei Gesteinen begrenzt durch die Porosität) und Dichte (mittlere Werte sind $1,7\text{ g/cm}^3$ für Böden, $3,5\text{ g/cm}^3$ für Gesteine) aufweisen. Aus diesen Gründen wird im folgenden zwischen Böden und Gesteinen unterschieden.

5.1.2 Neutronenproduktion aus der Nukleonenkomponente

Im Energiespektrum der Neutronen aus Reaktionen der Nukleonenkomponente der Höhenstrahlung (in Abb 5.1 (p,xn)) gibt es zwei Komponenten. Neben den bereits erwähnten Neutronen aus "Abdampf"-Prozessen (Energiebereich $1\ldots 10\text{ MeV}$) gibt es eine geringe Zahl höherenergetischer Neutronen (10 MeV bis 1 GeV , [Hes59]). Diese resultieren aus Schauern mit Emission von Anstoßneutronen, Ladungsaustausch und ähnlichen Prozessen. Da diese höherenergetischen Neutronen ebenfalls zu Kernverdampfungs- und Spallationreaktionen beitragen, werden sie hier nicht gesondert behandelt.

Die Tiefenabhängigkeit der Neutronenproduktionsrate $q_n(z)$ aufgrund der Nukleonenkomponente wird in erster Näherung (siehe Diskussion bei [Yok77]) gegeben durch

$$q_n(z) = q_{n0} \exp\left(-\frac{z}{\lambda}\right) \tag{5.1}$$

mit	z	Tiefe der Erdkruste bzw. Atmosphäre in g/cm^2 ,	
	q_{n0}	Neutronenproduktionsrate bei der Tiefe $z = 0$	und
	λ	Absorbtionslänge der Nukleonenkomponente.	

Experimentelle Absorbtionslängen λ für eine Auswahl von Materialien sind in Tabelle 5.1 angegeben. Gl. 5.1 gilt auch für die Luftschichten der Atmosphäre, wobei Höhen über dem Meeresspiegel von 0, 1000, 2000 und 3000 m ca. 1030, 915, 810 und 700 g/cm^2 von der Höhenstrahlung durchdrungene Flächenbelegungen bedeuten. Diese Untersuchung beschränkt sich auf Höhen unter 3000 m. In diesem Bereich ist die Absorbtionslänge λ unabhängig von der geomagnetischen Breite Λ ([Sch67], [And72]) und q_{n0} unbeeinflusst von der Sonnenaktivität und deren 11-Jahreszyklus. Im folgenden wird mit z immer die Tiefe in der Erdkruste bezeichnet, bei $z = 0$ an der Oberfläche.

Material	λ [g/cm ²]	Referenzen
Luft	160 ± 5	[Mab71]
SiO ₂	192 ± 6	[Yok77]
H ₂ O	168 ± ¹⁹ ₁₆	[Bag58]
Pb	350 ± 40	[Sim53]

Tabelle 5.1: Absorptionslängen von ausgewählten Materialien für die Nukleonkomponente der Höhenstrahlung

Für einen Vergleich der verschiedenen Meßwerte von q_{n0} müssen diese bezüglich des Target- bzw. Absorbermaterials, der Tiefe in der Atmosphäre und der geomagnetischen Breite umgerechnet werden. Die Umrechnung auf gleiches Material wurde nach Gl. 5.2 durchgeführt, welche auf einem Fit der Meßwerte von [Sim53] basiert:

$$q_{n0} \propto 0,313 A^{1/3} - 0,188$$

(5.2)

mit

A

Atommasse in u.

Die Abhängigkeit von q_{n0} von der geomagnetischen Breite wurde von [Ros56] gemessen (Abb. 5.2). Tabelle 5.2 zeigt alle verfügbaren Messergebnisse und deren Umrechnungen auf vergleichbare Bedingungen. Nicht berücksichtigt wurden die Messungen von [Ort54], [Tob51] und [Yam66], bei denen die verwendeten Paraffinabsorber zu klein waren (siehe Diskussion bei [Yam66]) sowie die Messung von [Swe54], die in zu geringer Wassertiefe erfolgte und deren gemessenen Neutronenflüsse deshalb durch Grenzflächeneffekte (Abschnitt 5.2) verfälscht wurden. Die im folgenden verwendeten Werte von q_{n0} resultieren aus dem in Tabelle 5.2 aufgeführten Mittelwert, umgerechnet auf Böden und Gesteine nach Gl. 5.2.

Tabelle 5.2: Gemessene Neutronenproduktionsraten und deren Umrechnung auf H₂O bei Meeresspiegelhöhe und einer geomagnetischen Breite $\Lambda > 60^\circ$

Absorber	gemessene Rate q_n [10 ⁻⁵ g ⁻¹ s ⁻¹]	geomagnetische Breite Λ	Referenz	Umrechnungsfaktoren			umgerechnete Rate q_{n0} [10 ⁻⁵ g ⁻¹ s ⁻¹]
				Target ^(a)	Λ (b)	Höhe (c)	
H ₂ O	1,25 ± 0,11	37,9°	[Yam66]	1	1,25	1,40	2,19
Al	3,49 ± 0,20	41,7°	[Tob51]	0,74	1,09	1,38	3,90
Pb	6,47 ± 0,24	41,7°	[Tob51]	0,31	1,09	1,20	2,62
H ₂ O	2,89 ± 0,09	54,2°	[Bag58]	1	1,00	1,00	2,89
H ₂ O	Mittelwert	≥60°	diese Arbeit	---	---	---	2,9 ± 0,4

- (a) nach Gleichung 5.2
- (b) nach Abbildung 5.2
- (c) nach Gleichung 5.1, angewandt auf Luft und obere Absorberschichten mit λ aus Tabelle 5.1

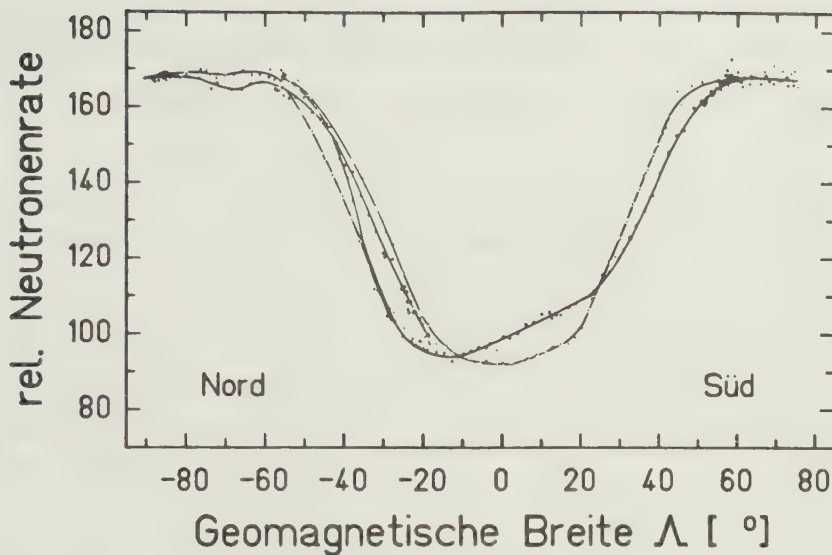


Abb. 5.2 Abhängigkeit der Neutronenproduktionsrate von der geomagnetischen Breite auf Meereshöhe. Die Abbildung wurde [Ros56] entnommen. Die verschiedenen Kurven verbinden die Messwerte von verschiedenen Routen, westlich und östlich des amerikanischen Kontinentes.

5.1.3 Neutronenproduktion aus Müoneneinfang

Durch die Wechselwirkung der primären Höhenstrahlung entstehen auch negative Müonen, vor allem in den oberen Schichten der Atmosphäre. Wegen ihrer im Vergleich zu Neutronen großen Reichweite können diese Müonen die Erdoberfläche erreichen und nach Abbremsung unter Bildung müonischer Atome von dem Coulomb-Feld der Atomkerne eingefangen werden. Ein Teil dieser Müonen wird vom Kern eingefangen, wobei aus (μ, xn) -Reaktionen Neutronen resultieren. Die durch Müonen bedingte Neutronenproduktionsrate q_μ ist gegeben durch [Cha71]

$$q_\mu(z) = I(z) f_c f_d \sum_{x=1}^{\infty} x f_x \quad (5.3)$$

mit

$I(z)$	Zahl gestoppter Müonen als Funktion der Tiefe z ,
f_c	Anteil gestoppter Müonen, der das 1s-Niveau im müonischen Atom erreicht,
f_d	Anteil der Müonen aus dem 1s-Niveau, der vom Atomkern eingefangen wird und
f_x	Wahrscheinlichkeit der Emision von x Neutronen nach dem Müoneneinfang.

$I(z)$ wird vor allem von der Flächenbelegung beeinflusst, während f_c durch die chemische Verbindung des Targets, f_d und f_x durch das jeweilige Element gegeben sind [Cha71]. Tabelle 5.3 zeigt Werte dieser Parameter für eine Reihe ausgesuchter Materialien.

Oxid	Z	f_c	f_d	$\sum f_x \cdot x$	Pro- dukt
Al ₂ O ₃	13	0,57	0,59	1,29	0,43
SiO ₂	14	0,39	0,64	1,08	0,27
CaO	20	1,36	0,84	1,10	1,26
TiO ₂	22	1,35	0,87	1,23	1,4
Fe ₂ O ₃	26	2,33	0,90	1,24	2,60

Tabelle 5.3 : Parameter zur Berechnung der Neutronenproduktionsrate aus Müoneneinfang für verschiedene Oxide. Der Beitrag der Sauerstoffatome wurde aufgrund des geringen Wertes für f_d auf deren Einfluss auf f_c beschränkt. Dementsprechend ist hier auch nur die Ordnungszahl Z der Metallkomponente der Verbindung angegeben. Der Wert f_x für Titan stammt aus Table 3 von [Cha71]. Der Wert f_c für Eisen wurde nach dem "Fermi-Feller-Z-Gesetz" (siehe [Cha71]) berechnet. Die anderen Werte von f_c , f_d und f_x wurden Table A1, Fig. 2 und Table A2 von [Cha71] entnommen.

Die Neutronenproduktion aus Müoneneinfang ist an der Erdoberfläche deutlich niedriger als die aus der Nukleonenkomponente, und zwar ist $q_\mu(z=0) \sim 0,42 \times 10^{-5} \text{ g}^{-1}\text{s}^{-1}$ im Vergleich zu $q_{n0} = 3,6 \times 10^{-5} \text{ g}^{-1}\text{s}^{-1}$ (für ein Gemisch von SiO₂ mit 20 Gew.-% Al₂O₃). Durch die langsamere Abnahme von $q_\mu(z)$ im Vergleich zu $q_n(z)$ überwiegt aber der Neutronenanteil aus (μ, xn)-Reaktionen bei größeren Tiefen (siehe Abb 5.1). Die Berechnungen der Neutronenproduktion aus Müoneneinfang sind nicht sehr genau, da die Unsicherheit einzelner Parameter in Gl. 5.3 bis zu 50% betragen kann [Cha71].

5.1.4 Neutronenproduktion aufgrund natürlicher Radioaktivität

Neutronenproduktion aufgrund der natürlichen Radioaktivität resultiert zum einen aus der Spontanspaltung von ²³⁸U und zum anderen aus (α, n)-Reaktionen, die durch α -Teilchen aus den Uran- und Thoriumzerfallsreihen ausgelöst werden. Die Rate der Neutronen aus der Spontanspaltung q_{Sp} ist gegeben durch [Fab88].

$$q_{Sp} = 1,366 \cdot 10^{-8} [U] \quad \text{g}^{-1}\text{s}^{-1} \tag{5.4}$$

mit [U] Uran-Konzentration in ppm.

Die Rate der Neutronen aus (α,n) -Reaktionen q_α unterteilt sich in die Anteile der Uran- und Thorium-Zerfallsreihe:

$$q_\alpha = V \text{ [U]} + W \text{ [Th]} \tag{5.5}$$

mit [Th] Thorium-Konzentration in ppm

wobei V (und analog W) gegeben ist durch

$$V = \sum_i \sum_\alpha \int_0^{E_\alpha} \frac{N_i \sigma_i}{-dE/dx} dE \tag{5.6}$$

mit i Index für die Targetelemente,
 α Index für die unterschiedlichen α -Zerfälle der Uran-Zerfallsreihe,
 E_α Anfangsenergie des α -Teilchens,
 N_i Zahl der Atome von Element i pro cm^3 ,
 σ_i (α,n) -Wirkungsquerschnitt des Elements i ,
 dE/dx Energieverlust.

Die Summation über die Elemente braucht nur bis $Z < 16$ geführt zu werden, denn bei einer maximalen α -Energie von 8.8 MeV (^{212}Po aus der Th-Zerfallsbreite) verhindert die Coulomb-Barriere Reaktionen von Atomkernen mit höherem Z . Die Atome der übrigen Elemente beeinflussen die Werte von V und W aber dennoch, und zwar durch ihre Beiträge zum Energieverlust dE/dx . Bezüglich der Summation über alle α -Zerfälle wird ein Gleichgewicht zwischen Uran und dessen Töchtern angenommen.

Mit der Näherung, daß die relativen Energieverluste unabhängig von der Energie sind, läßt sich Gl. 5.6 vereinfachen zu ([Fei68], [Fab88])

$$V = \frac{\sum_i \left(\frac{dE}{dx} \right)_i F_i V_i}{\sum_i \left(\frac{dE}{dx} \right)_i F_i} \tag{5.7}$$

mit F_i Gewichtsanteil von Element i in ppm,
 V_i Neutronenproduktion von Element i bei einer Urankonzentration von 1 ppm.

Eine entsprechende Beziehung gilt für W . Der durch obige Näherung bedingte Fehler ist im Energiebereich von 5,3 bis 8,8 MeV kleiner als $\pm 4\%$ [Fei68]. In Anlehnung an [Fab88] wurden für $(dE/dx)_i$ die Tabellenwerte von [Zie77] für 8 MeV α -Teilchen verwendet. Die Werte für V_i

und W_i wurden [Fab88] entnommen, wo sie aus [Fei68], [Bai79] und [Wes82] zusammengestellt wurden. Von den Wirkungsquerschnitten und damit den V_i haben die Elemente Beryllium, Bor, Fluor, Lithium und Natrium die höchsten Werte mit 265, 62, 31, 21 und 15 Neutronen pro Gramm pro Jahr bei 1 ppm Uran-Gehalt. Die entsprechenden Werte für Aluminium, Silicium und Sauerstoff liegen bei 5,1, 0,69 und 0,23 Neutronen $\text{g}^{-1} \text{yr}^{-1} [\text{U}]^{-1}$. Folglich bestimmen aufgrund der viel größeren Häufigkeiten Aluminium, Silicium und Sauerstoff im allgemeinen die Gesamtwerte V und analog W in Böden und Gesteinen. Die resultierenden Neutronenproduktionsraten ($q_\alpha + q_{\text{Sp}}$) für verschiedene Gesteinsarten lagen zwischen $1,5 \times 10^{-10} \text{ g}^{-1} \text{s}^{-1}$ ("Ultramafic") und $4,2 \times 10^{-7} \text{ g}^{-1} \text{s}^{-1}$ ("Granit"), wobei lokale Werte um Größenordnungen außerhalb dieses Bereiches sein können.

5.1.5 Gesamtrate produzierter Neutronen

Die Gesamtrate der produzierten Neutronen q resultiert aus der Addition der Einzelbeiträge (Gl. 5.8). (Zur besseren Übersicht wird im folgenden statt $q(z)$ nur q geschrieben.)

$$q = q_n(z) + q_\mu(z) + q_\gamma(z) + q_\alpha + q_{\text{Sp}} \quad (5.8)$$

mit $q_\gamma(z)$ Neutronenproduktionsrate aufgrund Bremsstrahlung, siehe Abb. 5.1.

Die Parameter für die Neutronenproduktionsrate des Gesteins mit Standardzusammensetzung (Abb. 5.1) betragen $q_{n0} = 3,75 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{g}^{-1}$, $q_\mu(z=0) = 4,38 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1} \text{g}^{-1}$ und $(q_\alpha + q_{\text{Sp}}) = 3,09 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1} \text{g}^{-1}$ (bei $[\text{U}] = 2,7 \text{ ppm}$ und $[\text{Th}] = 9,6 \text{ ppm}$).

5.2 Neutronenfluß und ^{41}Ca -Produktion

Die mit einer Gesamtrate q produzierten Neutronen haben bei ihrer Freisetzung Energien im MeV-Bereich. Durch Stöße mit den Atomen in der Erdkruste werden diese Neutronen mit einer Wahrscheinlichkeit p_{th} bis zu thermischen Energien ($E < 0,4$ eV) abgebremst. Von Grenzbe-
reichen abgesehen (siehe unten), besteht wegen der geringen Reichweite der Neutronen im Boden
von einigen Zentimetern ein Gleichgewicht zwischen Produktion und Absorbtion. Der
Neutronenfluß, unterteilt in den thermischen Φ_{th} und epithermischen Φ_{epi} ($E \geq 0,4$ eV) Anteil, ist
unter diesen Voraussetzungen gegeben durch [Fab88]:

$$\Phi_{\text{th}} = \frac{q p_{\text{th}}}{\sigma_{\text{th}}} \quad (5.9a)$$

$$\Phi_{\text{epi}} = \frac{q (1 - p_{\text{th}})}{I_{\text{eff}}} \quad (5.9b)$$

mit I_{eff} effektives Resonanz-Integral in cm^2g^{-1} ,
 σ_{th} makroskopischer thermischer Absorbtionswirkungs-
querschnitt in cm^2g^{-1} .

Die Wahrscheinlichkeit p_{th} für die Abbremsung auf thermische Energien ("Thermalisierungs-
wahrscheinlichkeit") wird abgeschätzt durch [Fab88]

$$p_{\text{th}} = \exp \left(\frac{- I_{\text{eff}}}{\sum_i \xi_i N_i (\sigma_{\text{sc}})_i} \right) \quad (5.10)$$

mit $\xi_i = 2 (A_i + 0,667)^{-1}$ für $Z_i > 1$,
 $= 1$ für Wasserstoff;
 $(\sigma_{\text{sc}})_i$ Streuwirkungsquerschnitt des Elementes i .

I_{eff} und σ_{th} werden aus den entsprechenden Größen der einzelnen Elemente mit den in [Mug81]
und [Mug84] tabellierten Werten berechnet:

$$I_{\text{eff}} = \sum_i N_i (I_a)_i \quad , \quad (5.11a)$$

$$\sigma_{\text{th}} = \sum_i N_i (\sigma_a)_i \quad . \quad (5.11b)$$

Die Voraussetzung von Gl. 5.9, nämlich ein lokales Gleichgewicht zwischen Absorbtion und
Produktion, ist an der Grenzfläche Luft/Erdboden nicht erfüllt. Durch die starke Resonanz der

Einfangreaktion $N^{14}(n,p)^{14}C$ bei ca. 1 eV erreichen nur wenige Neutronen in der Atmosphäre thermische Energie. Deswegen bewirkt die Diffusion einen starken Netto-Neutronenfluß aus der obersten Bodenschicht in die Atmosphäre, und eine Reduktion der Neutronenfluß im Boden. Der exakte Verlauf des Flusses in dem Bereich der Grenzfläche läßt sich nur schwer angeben, da er von Details des Abbremsprozesses und der Diffusion abhängt. Für die folgenden Betrachtungen wurden für Φ_{th} die Berechnungen von [Bri78] zugrundegelegt, skaliert bei $z = 100 \text{ g/cm}^2$ auf den Wert nach Gl. 5.9a (Abb 5.3).

Aus den Neutronenflüssen erhält man die ^{41}Ca -Produktion P_{41} in $s^{-1}cm^{-3}$ mit Hilfe der Beziehung

$$P_{41} = N_{40} \sigma_{41} \Phi_{th} + N_{40} I_{41} \Phi_{epi} \quad (5.12)$$

mit N_{40} Zahl der ^{40}Ca -Atome pro cm^3 ,
 σ_{41} Wirkungsquerschnitt für die mit thermischen Neutronen induzierte Reaktion $^{40}Ca(n,\gamma)^{41}Ca$,
 I_{41} analog zu σ_{41} für epithermische Neutronen.

Die Wirkungsquerschnitte sind $\sigma_{41} = 0,43 \text{ b}$ und $I_{41} = 0,22 \text{ b}$ [Mug81]*.

In manchen Fällen ist es anschaulicher, anstatt der Produktionsrate die Gleichgewichtskonzentration nach genügend langer Zeit C_{41}^∞ zu untersuchen, die sich ergibt aus

$$\begin{aligned} C_{41}^\infty &= \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{IS}{N_{40}} \frac{t_{1/2}}{\ln 2} P_{41} \left(1 - \exp \frac{-\ln 2}{t_{1/2}} t \right) \\ &= \frac{IS}{N_{40}} \frac{t_{1/2}}{\ln 2} P_{41} \end{aligned} \quad (5.13)$$

mit IS Isotopenhäufigkeit von ^{40}Ca (0,969),
 $t_{1/2}$ Halbwertszeit von ^{41}Ca ($\sim 10^5 \text{ yr}$).

Die Neutronenflüsse für das Gestein mit Standardzusammensetzung (Abb. 5.3) resultieren aus den folgenden Werten : $p_{th} = 0,864$, $\sigma_{th} = 7,19 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{g}$ und $I_{eff} = 4,12 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{g}$.

* Die hier benutzten Wirkungsquerschnitte sind bezogen auf eine Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/s. Deshalb stellt Φ_{th} (Gl.5.9a) den konventionellen thermischen Fluß dar, der mit dem wirklichen thermischen Fluß Φ_M über die Temperatur des Neutronenspektrums T in Beziehung steht:

$$\Phi_M = \Phi_{th} 2/\pi \sqrt{T/293^\circ K}.$$

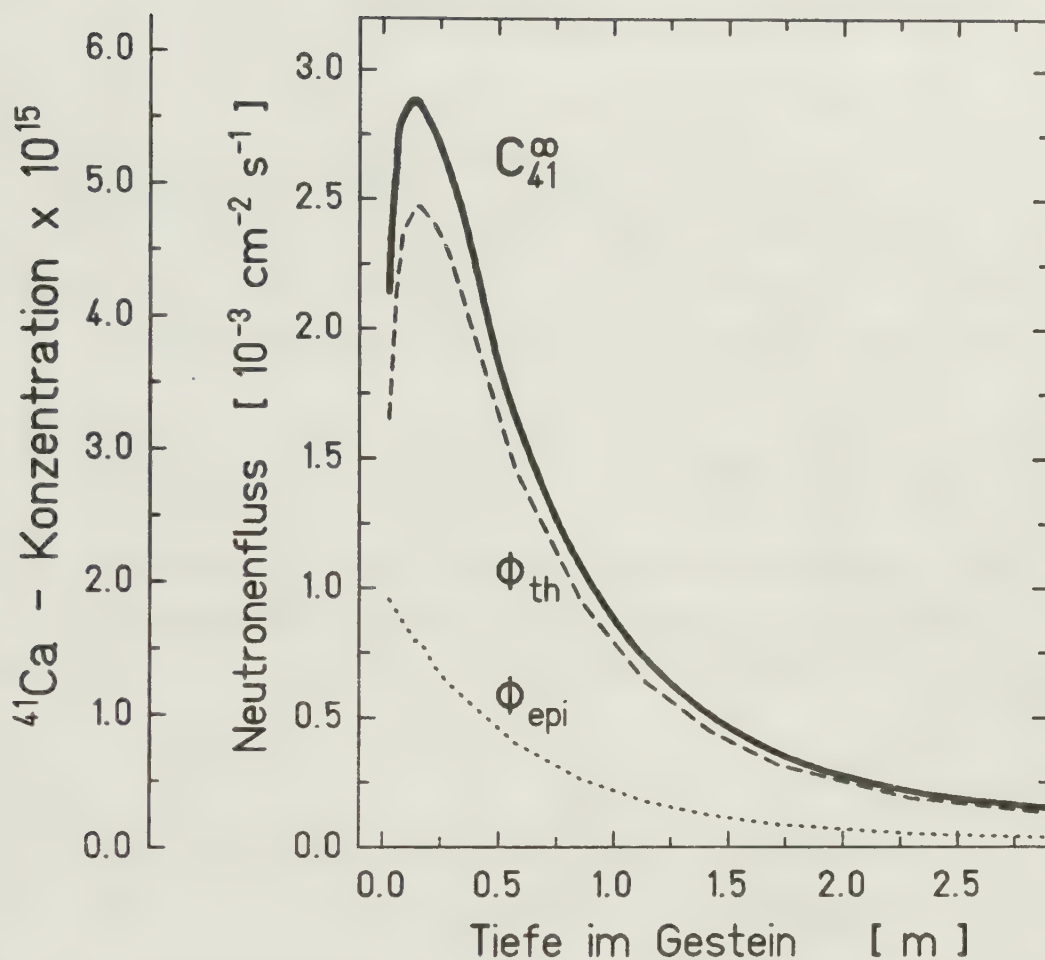


Abb. 5.3 Berechnete Neutronenflüsse und zugehörige ^{41}Ca - Gleichgewichtskonzentrationen C_{41}^{∞} für Gestein mit Standard-Zusammensetzung wie in Abb. 5.1 auf Meeresspiegelhöhe und bei einer geomagnetischen Breite $\Lambda > 60^\circ$. Die Umrechnung von Flächenbelegung in Tiefe erfolgte mit einer Dichte $\rho = 3,5 \text{ g/cm}^3$.

5.3 Variationen der ^{41}Ca -Konzentration

Dieser Abschnitt behandelt die Variationen der ^{41}Ca -Produktionsraten und damit der ^{41}Ca -Konzentration aufgrund unterschiedlicher chemischer Zusammensetzungen der Böden bzw. Gesteine. Nicht eingegangen wird auf Variationen bedingt durch die geomagnetischen Breite Λ (Abb. 5.2), der Höhe über dem Meeresspiegel (Gl. 5.1) und den Einfluß der Vorgeschichte, z. B. den Effekt der letzten Eiszeit, in der die ^{41}Ca -Produktion durch die Eisschichten reduziert wurde (Würm- oder Weichsel-Eiszeit, 10700 Jahre B.P. bis ca. 120000 Jahre B.P.).

Die Parameter λ , q_{n0} und $q_{\mu}(z)$ für Böden und Gesteine variieren nur geringfügig, da die hierfür relevanten Hauptkomponenten überwiegend die gleichen sind, nämlich Sauerstoff, Silicium und Aluminium (zusammen im Mittel 83 Gew.-%). Aufgrund der geringen Z - bzw. A -Abhängigkeit dieser Größen gilt dies auch für Kalkstein (CaCO_3). Unter Vernachlässigung der Beiträge der natürlichen Radioaktivität ist somit die Gesamtneutronenproduktionsrate $q(z)$ für alle Böden und Gesteine gleich (z in g/cm^2). In dieser Näherung ist die relative ^{41}Ca -Konzentration gegeben durch :

$$\begin{aligned} \frac{C_{41}}{(C_{41})_{\text{st}}} &= \frac{\frac{P_{41}}{N_{40}}}{\left(\frac{P_{41}}{N_{40}}\right)_{\text{st}}} = \frac{\Phi_{\text{th}} + \frac{I_{41}}{\sigma_{41}} \Phi_{\text{epi}}}{(\Phi_{\text{th}})_{\text{st}} + \frac{I_{41}}{\sigma_{41}} (\Phi_{\text{epi}})_{\text{st}}} \\ &= \frac{\frac{p_{\text{th}}}{\sigma_{\text{th}}} + \frac{I_{41}}{\sigma_{41}} \frac{1 - p_{\text{th}}}{I_{\text{eff}}}}{\left(\frac{p_{\text{th}}}{\sigma_{\text{th}}}\right)_{\text{st}} + \frac{I_{41}}{\sigma_{41}} \left(\frac{1 - p_{\text{th}}}{I_{\text{eff}}}\right)_{\text{st}}} \end{aligned} \quad (5.14)$$

wobei der Index "st" die Größen des Bezugsgesteins kennzeichnet.

Die Wirkungsquerschnitte I_a und σ_a einiger Spurenelemente sind viel größer als die der Hauptkomponenten, so daß diese trotz niedriger Konzentration die Werte I_{eff} und σ_{th} (Gl. 5.9) und damit den Neutronenfluß bestimmen können. Z. B. betragen die Resonanzintegrale I_a von Bor, Samarium, Gadolinium, Mangan und Chlor 1722, 1400, 390, 14 und 14 b, im Vergleich zu I_a von Aluminium, Silicium und Sauerstoff mit 17×10^{-2} , 13×10^{-2} und 4×10^{-4} b. Da der Gehalt an Spurenelementen stark variieren kann, gilt dies auch für die ^{41}Ca -Konzentrationen unter sonst gleichen Bedingungen. Für solche Untersuchungen benötigt man die chemischen Analysen von Bodenproben einer ausreichenden Zahl von Fundorten mit Tiefenprofil jedes Fundortes. Abb. 5.4 zeigt eine solche Untersuchung für die ^{41}Ca -Produktion in Granitgesteinen aus dem Erzgebirge und dem Thüringer Wald.

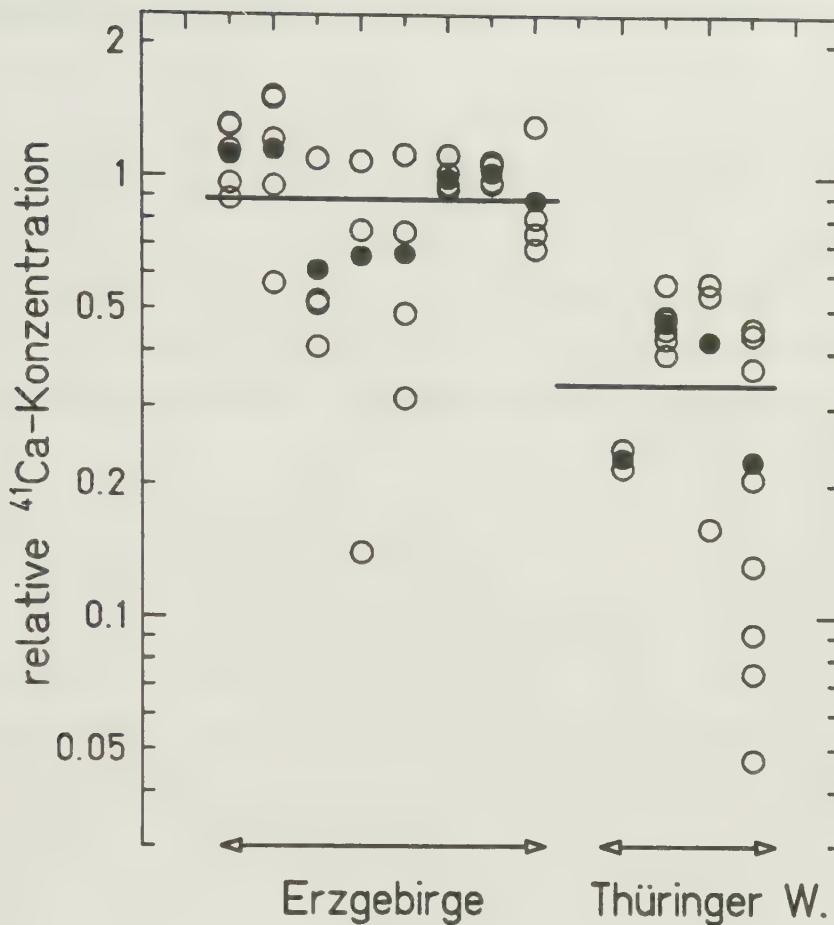


Abb. 5.4 Berechnete relative ^{41}Ca -Konzentrationen für verschiedene Granitgesteine aus dem Erzgebirge und dem Thüringer Wald. Als Bezugspunkt wurde die ^{41}Ca -Konzentration der Standard-Zusammensetzung (siehe Abb.5.1) verwendet. Die Berechnungen wurden mit den Gesteinsanalysen von [Brä69] (mit 24 aufgeführten Elementen) durchgeführt. Alle zu einer Fundstelle zugehörigen Werte sind durch offene Symbole in derselben Spalte dargestellt. Die vollen Symbole zeigen die Mittelwerte jeder Fundstelle an, die Striche die der Regionen.

Weitere Berechnungen wurden durchgeführt für 13 Böden aus Schottland ([Mit64], [Wes78]) und für 9 Gesteinsarten ohne regionalen Bezug ([Fab88], [Mie79], [Mid88b]). Die Variationen entsprechen denen der Mittelwerte der Fundstellen in Abb. 5.4.

Zusätzlich variiert die ^{41}Ca -Produktion mit dem Wassergehalt der Böden/Gesteine. Der Wasserstoff steigert vor allem die Wahrscheinlichkeit der Abbremsung auf thermische Energien p_{th} , was für sich genommen die ^{41}Ca -Produktion erhöht. Das Produkt ($\xi \times \sigma_{\text{sc}}$) hat für Wasserstoff einen Wert von 20,5 b, im Vergleich zu 0,45, 0,14 und 0,10 b für Sauerstoff, Silicium und Aluminium, und der Wasserstoff kann als Bestandteil von H_2O in Böden und Gesteinen hohe Konzentrationen erreichen. Daneben hat H_2O aber auch einen größeren Absorptionsquerschnitt σ_a als SiO_2 oder Al_2O_3 . Bei den meisten Gesteinen bzw. Böden, bei denen im wasserfreien Zustand

$0,6 \leq p_{\text{th}} \leq 0,8$ ist, senkt deswegen der Wassergehalt die ^{41}Ca -Produktion. Bei Ton und Schiefer aber, bei denen im wasserfreien Zustand $p_{\text{th}} = 0,3$ ist, erhöht ein Wassergehalt von 2 bis 6 % die ^{41}Ca -Produktion um 40 %.

Zusammenfassend läßt sich sagen: die Variationen der ^{41}Ca -Produktion aufgrund der chemischen Zusammensetzung verschiedener Standorte können bis zu einer Größenordnung betragen. Im Hinblick auf eine ^{41}Ca - Altersbestimmung, für die Variationen innerhalb einer Region relevant sind, können demgegenüber die übrigen Faktoren wie z. B. Höhe über dem Meeresspiegel im allgemeinen vernachlässigt werden. Die Variationen in der ^{41}Ca -Produktion können aber nicht einfach auf die ^{41}Ca -Konzentrationen in Knochen übertragen werden, wie im nächsten Abschnitt erläutert wird.

5.4 Folgerungen für die ^{41}Ca -Altersbestimmung

Bei der vorgeschlagenen Methode zur Datierung würde das Alter t eines Fossils aus der Abnahme der ^{41}Ca -Konzentration in dessen Knochen nach dem radioaktiven Zerfallsgesetz bestimmt werden,

$$t = \frac{t_{1/2}}{\ln 2} \left(\ln C_{41}^0 - \ln C_{41} \right) \quad (5.15)$$

mit C_{41}^0 ^{41}Ca -Konzentration des Knochens zur Zeit $t = 0$.

Gl. 5.15 setzt voraus, daß die in situ-Produktion von ^{41}Ca nach dem Tod des Lebewesens ($t=0$) durch Abschirmung von der Höhenstrahlung unterbunden wurde und daß kein Austausch von Calcium zwischen dem Knochen und der Umgebung stattfand. Da man den individuellen Wert C_{41}^0 des Knochens nicht feststellen kann, muß geklärt werden, ob dieser unter bestimmten Voraussetzungen ersetzt werden kann durch Mittelwerte. Diese Mittelwerte können mit Sicherheit nur regionale Gültigkeit haben und unterliegen möglicherweise noch anderen Einschränkungen. Die Unsicherheit aufgrund der Verwendung von Mittelwerten ΔC_{41}^0 bewirkt eine Unsicherheit in der Altersbestimmung Δt von

$$\Delta t = \frac{t_{1/2}}{\ln 2} \cdot \frac{\Delta C_{41}^0}{C_{41}^0} \quad (5.16)$$

Bei dem vorgesehenen Datierungszeitraum von 50 000 bis 700 000 Jahren [Rai79] ist, speziell wegen der Untergrenze von 50 000 Jahren, eine Unsicherheit $\Delta t \leq 10\,000$ Jahre zu fordern, und damit nach Gl. 5.16 $\Delta C_{41}^0/C_{41}^0 \leq 7\%$.

Abschätzungen von ΔC_{41}^0 können aus der Variationsbreite von ^{41}Ca -Konzentrationen in zeitgenössischen Knochen gewonnen werden. Von den bisherigen Meßwerten (Abb. 4.7) eignen sich nur die Werte vom Turkana-See in Kenya [Mid88a] und vom Odenwald (diese Arbeit), da nur bei diesen Proben mehrere aus einer Region kommen. In beiden Gruppen streuen die Werte über eine Größenordnung, was eine Altersbestimmung unrealistisch macht, wenn sich diese Schwankungsbreite bestätigt (siehe Abschnitt 4.3).

Diese notwendige Bestätigung kann nicht aus den Berechnungen abgeleitet werden, denn man erhält zwar Aussagen über die Variationsbreite in Gesteinen, aber schon für Böden müssen zusätzliche Faktoren, die quantitativ schwer abschätzbar sind, berücksichtigt werden. Z. B. werden in Böden die löslichen Ionen (also auch Ca^{2+}) zwischen den Bodenschichten verschiedener Tiefe ausgetauscht. Es besteht ein dynamisches Gleichgewicht aufgrund aufwärts wir-

kenden Kapillarkräfte und der Schwerkraft. Eine sichtbare Folge davon ist z. B. die Bildung von CaCO_3 -Horizonten im Boden [Gan65]. Dazu kommt z. B. die Durchmischung durch die Pflanzen, die aus verschiedenen Tiefen Calcium aufnehmen. In Knochen kommen noch weitere Effekte hinzu, die die Variationen ΔC_{41}^0 beeinflussen, insbesondere die Durchmischung aufgrund der Mobilität der Tiere und Menschen. Die Variationsbreite der natürlichen ^{41}Ca -Konzentration ist somit Ausdruck davon, inwieweit die Durchmischung die großen Unterschiede der ^{41}Ca -Produktionen verschiedener Standorte ausgleichen kann.

Eine endgültige Klärung der Größe der Variationsbreite ΔC_{41}^0 kann nur in systematischen Untersuchungen erfolgen, wobei die Hoffnung auf Erfüllung der Bedingung $\Delta C_{41}^0/C_{41}^0 \leq 7\%$ allerdings gering ist. Falls die Variationsbreite dies nicht erfüllt, aber deutlich kleiner als eine Größenordnung ist, eignet sich ^{41}Ca immerhin zur Datierung älterer Funde, bei denen der relative Fehler $\Delta t/t$ geringer ist, da die Unsicherheit des Alters Δt aufgrund der Variationsbreite eine absolute Unsicherheit darstellt (Gl. 5.16). Der Datierungsbereich kann jedoch nicht beliebig auf ältere Proben ausgedehnt werden. Dieser wird zum einen begrenzt durch die noch meßbaren ^{41}Ca -Konzentrationen. (Nach 10 Halbwertszeiten, also 10^6 Jahren ist die Konzentration um einen Faktor 10^3 geringer.) Zum anderen läßt sich, abhängig von z. B. der natürlichen Radioaktivität, für zu alte Proben die in situ-Produktion nicht vernachlässigen (siehe Abb. 5.1), so daß Gleichung 5.15 nicht mehr gilt. Eine andere mögliche Perspektive für ^{41}Ca -Altersbestimmung könnte in der Datierung von Fossilien ehemaliger Meeresbewohner liegen, falls die ^{41}Ca -Variationsbreite im Meer geringer ist. Dies festzustellen bedarf jedoch einer ebenso systematischen Untersuchung wie die Untersuchung zeitgenössischer ^{41}Ca -Konzentrationen von Landlebewesen.

5.5 Messung der Erosion mit ^{41}Ca

Aufgrund von Erosion sind Gesteinsschichten, die in der Gegenwart an der Oberfläche liegen, in der Vergangenheit von anderen Schichten bedeckt gewesen. Durch die Veränderung der Tiefe und damit der Abschirmung der Höhenstrahlung beeinflusst die Erosion auch die Bildung von Radionukliden, woraus eine Meßmöglichkeit resultiert, die im folgenden beschrieben wird. Nicht eingegangen wird auf die bereits existierenden Messungen von ^{41}Ca -Konzentrationen in Gesteinen ([Mid88a], [Kut88a]), da diese für diesen Zweck nicht systematisch genug ausgesucht worden sind. Bisherige Angaben von Erosionsraten stützen sich vor allem auf Abschätzungen des Transports verwitterter Sedimente und aufgelöster Elemente zum Ozean [Nis86]. Typische Werte für Erosionsraten von Felsen liegen im Bereich von 8×10^{-4} bis 2×10^{-2} cm/yr [Rös72].

Die Zeitentwicklung der ^{41}Ca -Konzentration C_{41} unter Einfluß einer Produktionsrate P_{41} (Gl.5.12) wird durch die folgende Differentialgleichung beschrieben :

$$\frac{dC_{41}}{dt} = \frac{IS}{N_{40}} P_{41}(z(t)) - C \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \quad (5.17)$$

Der Einfluß der Erosion äußert sich in der Zeitabhängigkeit der Tiefe $z(t)$, die bei konstanter Erosionsrate gegeben wird durch

$$z(t) = z_0 - \rho \varepsilon t \quad (5.18)$$

mit ρ Dichte des Gesteins und
 ε Erosionsrate in cm/yr .

Für konstante Erosionsraten läßt sich der Anteil der Konzentration, der durch die Nukleonenkomponente der Höhenstrahlung bedingt ist, aufgrund deren exponentieller Abhängigkeit von der Tiefe (Gl. 5.1), aus Gleichung 5.17 analytisch berechnen. Die zugehörige Gleichgewichtskonzentration $C_{41,n}^\infty$ wird gegeben durch

$$C_{41,n}^\infty = IS \times \frac{q_{n0} \exp\left(-\frac{z}{\lambda}\right)}{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} + \frac{\varepsilon \rho}{\lambda}} \times \left(\sigma_{41} \frac{p_{\text{th}}}{\sigma_{\text{th}}} + I_{41} \frac{1 - p_{\text{th}}}{I_{\text{eff}}} \right) \quad (5.19)$$

mit λ Absorptionslänge der Höhenstrahlung,
in Gesteinen 192 g/cm²(siehe Tabelle 5.1).

Gl. 5.19 setzt die Vernachlässigbarkeit der Durchmischung und des Stoffaustausches voraus.

Zur Bestimmung von Erosionsraten von Gesteinen muß als erstes das Tiefenprofil der ^{41}Ca -Konzentration (mit AMS) gemessen werden. Daraus ermittelt man den Beitrag der Nukleonenkomponente $C_{41,n}^\infty$ aufgrund der verschiedenen Tiefenabhängigkeiten (Abb. 5.1). Zur Ermittlung der Erosionsrate nach Gleichung 5.19 benötigt man nun noch den eingeklammerten Ausdruck, der den Einfluß der chemischen Zusammensetzung beinhaltet. Dieser kann aus einer chemischen Analyse mit den bekannten Wirkungsquerschnitten (analog zu Abschnitt 5.2) berechnet werden. Die Genauigkeit der Bestimmung der Erosionsrate kann jetzt noch dadurch erheblich gesteigert werden, daß man den Neutronenfluß als Funktion von z (und auch damit auch λ) für den speziellen Standort mißt.

Die Variationsbreite der natürlichen ^{41}Ca -Produktion geht somit im Unterschied zur ^{41}Ca -Altersbestimmung nicht als Meßfehler ein, weil aufgrund der Lokalisierung der Produktion die unterschiedliche Produktionsrate bestimmt werden kann. Der zu messende Effekt, d.h. die Reduktion der ^{41}Ca -Konzentration aufgrund der Erosion, wird durch den Faktor C_E gegeben (vergleiche Gl. 5.19 mit Gl. 5.13)

$$C_E = \frac{\frac{\ln 2}{t_{1/2}}}{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} + \frac{\varepsilon \rho}{\lambda}} \quad (5.20)$$

Bei Erosionsraten ε von 8×10^{-4} bis 2×10^{-2} cm/yr [Rös72] liegt C_E im Bereich von 32 % bis 2 % (mit $\rho = 3,5 \text{ g/cm}^3$ und $\lambda = 192 \text{ g/cm}^2$) und sollte somit gut meßbar sein. Bei dem derzeitigen Stand der ^{41}Ca -AMS führt dies jedoch auch zu Problemen mit den Nachweisgrenzen, insbesondere da auch Proben aus größeren Tiefen gemessen werden müssen. Bereits mit den gegenwärtigen Nachweisgrenzen lassen sich aber schon Untersuchungen durchführen, und zwar von Standorten mit geringeren Erosionsraten, einer die ^{41}Ca -Produktion begünstigende Elemente-Zusammensetzung oder in geographischen Positionen mit größerer Höhe über dem Meeresspiegel, also mit intensiverer Höhenstrahlung.

Die Erosionsraten können im Prinzip auch mit Hilfe anderer Radioisotope als ^{41}Ca gemessen werden. Wie im folgenden gezeigt wird, sind jedoch die z.Zt. nachweisbaren Radioisotope für solche Messungen nur bedingt geeignet. Die Radioisotope, deren Halbwertszeit nicht zu kurz ist (d.h. $C_E \neq 1$) und deren Produktion durch Höhenstrahlung im Erdboden bei dem gegenwärtigen Stand der Technik nachgewiesen werden kann, sind ^{36}Cl , ^{26}Al , ^{10}Be und ^{129}I [Lal87] mit Halbwertszeiten von $3,0 \times 10^5$, $7,1 \times 10^5$, $1,6 \times 10^6$ und $1,6 \times 10^7$ Jahren.

Bei der Produktion von ^{36}Cl können, je nach chemischer Zusammensetzung des Gesteins, zwei Reaktionen dominieren, die Spallation von Calcium und Kalium oder der Neutroneneinfang $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$. Für die Erosionsmessung muß im erstgenannten Fall die Konzentration $^{36}\text{Cl}/\text{K}$

bzw. $^{36}\text{Cl}/\text{Ca}$, im zweiten Fall $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ bestimmt werden. Folglich ist ^{36}Cl nur für Erosionsmessungen von Gesteine anwendbar, bei denen der Anteil von Kalium, Calcium oder Chlor über die anderen dominiert. Ein weiteres Problem bei der Verwendung von ^{36}Cl ist die leichte Löslichkeit von Chlor, die Kontamination und Auswaschungen [Kub84] fördert. Die Möglichkeit der Kontamination ergibt sich durch ^{36}Cl -Produktion aufgrund der Spallation von Argon in der Stratosphäre und durch ^{36}Cl -Produktion aus Atombombentests [Elm82]. Auswaschung des Chlors führen im Fall der Meßgrößen $^{36}\text{Cl}/\text{Ca}$ bzw. $^{36}\text{Cl}/\text{K}$ zu Verfälschungen. Bei calciumreichem Gestein ist zudem die Tiefenabhängigkeit nicht trivial, da ^{36}Cl außer durch Spallation auch durch Müoneneinfang $^{40}\text{Ca}(\mu,\alpha)^{36}\text{Cl}$ produziert wird.

Die Produktion von ^{26}Al erfolgt hauptsächlich durch Spallation und Müoneneinfang von Silicium, d.h. über $\text{Si}(\text{p},\text{xn})^{26}\text{Al}$ und $\text{Si}(\mu,\text{xn})^{26}\text{Al}$ -Reaktionen, während ^{10}Be durch Spallation von Sauerstoff produziert wird. Diese Isotope lassen sich deswegen zur Messung der Erosion in Quarz verwenden, welcher Silicium und Sauerstoff als Hauptkomponenten enthält [Nis86]. Quarz bietet auch den Vorteil besonderer Beständigkeit gegen Stoffaustausch mit der Umgebung, was für die Verwendung von ^{10}Be , aufgrund der wesentlich höheren Produktionsraten in der Atmosphäre, besonders wichtig ist. Für die Verwendung von ^{26}Al muß der Aluminium-Gehalt des Gesteins < 300 ppm sein [Nis86], weil sonst das Verhältnis $^{26}\text{Al}/\text{Al}$ unter die Nachweisgrenze sinkt. Analoges gilt für den Beryllium-Gehalt, welcher aber in der Natur sowieso nicht sehr hoch ist. Auch bezüglich niedrigem Gehalt an diesen beiden Metallen scheint Quarz gute Voraussetzungen zu bieten. Allerdings kann für ^{10}Be und ^{26}Al die Berechnung von P_0 und damit die Erosionsrate nicht mit der großen Genauigkeit wie bei ^{41}Ca erfolgen, da die Berechnungen der Produktion von Isotopen durch Reaktionen mit Müonen aus der Höhenstrahlung große Unsicherheiten haben [Cha71].

Die Produktion von ^{129}I erfolgt einmal durch Höhenstrahlung, d.h. durch Spallation von Barium und induzierte Spaltung von Thorium und Uran, zum anderen aber auch durch Spontanspaltung. Welcher der beiden Teile überwiegt, hängt von der chemischen Zusammensetzung des Bodens ab. Weitere Produktionsmechanismen, von denen jeder im allgemeinen mehr als 5 % zur Gesamtproduktion beiträgt, sind $^{128}\text{Te}(\text{n},\gamma)^{129}\text{Te} \rightarrow ^{129}\text{I}$, $^{130}\text{Te}(\mu,\text{n})^{129}\text{Sb} \rightarrow ^{129}\text{I}$, $^{133}\text{Cs}(\mu,\text{p}3\text{n})^{129}\text{I}$ und $^{134}\text{Ba}(\mu,\alpha\text{n})^{129}\text{I}$ [Fab88]. Aufgrund dieser komplizierten Produktion mit vielen möglichen Target/Projektil-Kombinationen ist ^{129}I für Erosionsmessungen nicht geeignet.

Aus diesen Gründen stellt die Messung von Erosionsraten für ^{41}Ca -AMS nicht nur eine interessante Anwendung dar, sondern auch eine Motivation zur weiteren Steigerung der Nachweisgrenze, um diese Messungen auch unter ungünstigen Bedingungen durchführen zu können.

6. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden Wege gesucht, die Nachweisempfindlichkeit der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) für ^{41}Ca soweit zu erhöhen, daß natürliche ^{41}Ca -Konzentrationen meßbar werden.

Dazu wurde ^{41}Ca -AMS am Beschleuniger UNILAC der GSI durchgeführt, der aufgrund der Verwendung positiver Ionenquellen und höherer Ionenenergie Vorteile gegenüber Tandem-Beschleunigern bietet. Auf diese Weise wurde eine Empfindlichkeit im Bereich von 10^{-15} erreicht. Diese erlaubt Messungen von zeitgenössischen natürlichen ^{41}Ca -Konzentrationen, sobald das Problem der Transmissionbestimmung gelöst ist. Hierzu wurden Vorschläge erarbeitet und deren Durchführbarkeit diskutiert. Der Nachweis der ^{41}Ca -Ionen ist bei den hohen UNILAC-Energien besonders untergrundfrei. Eine Abschätzung ergab ein Untergrund-Niveau, das einer ^{41}Ca -Konzentration, bezogen auf ^{40}Ca , von weniger als 10^{-17} entspricht.

Unabhängig von den am UNILAC durchgeführten Messungen wurde ein Konzept zur elektromagnetischen Anreicherung von ^{41}Ca -Konzentration mit variablen Anreicherungsfaktoren entwickelt. Nach Anreicherung am GSI-Massenseparator um Faktoren 50 bzw. 25 wurden ^{41}Ca -Konzentrationen von drei zeitgenössischen Rehknochen aus dem Odenwald in einer AMS-Messung am 14UD-Pelletron Tandem in Rehovot (Israel) gemessen. Die ermittelten ^{41}Ca -Konzentrationen liegen, unter Berücksichtigung der Anreicherungsfaktoren, im Bereich von 10^{-14} bis 10^{-13} . Zusammen mit kürzlich auch in anderen Labors erfolgten Messungen liegen damit erste Werte der ^{41}Ca -Konzentrationen in zeitgenössischen Knochen vor.

Eine theoretische Studie der ^{41}Ca -Produktion in der Erdoberfläche aufgrund der Höhenstrahlung verdeutlicht den Einfluß der Spurenelemente auf den Neutronenfluß und damit auf die ^{41}Ca -Produktion. Dieser Einfluß ist eine mögliche Erklärung für die beobachtete Variationsbreite der ^{41}Ca -Konzentrationen in zeitgenössischen Knochen, die von entscheidender Bedeutung für die Durchführbarkeit einer ^{41}Ca -Altersbestimmung ist. Unabhängig von dieser Variationsbreite ist dagegen eine in dieser Arbeit vorgeschlagene Methode zur Bestimmung der Erosionsraten von Gesteinen aus deren ^{41}Ca -Konzentrationen, die unter Verwendung anderer Radioisotope nur bedingt ermittelt werden können.

Literaturverzeichnis

- [Ale70] K. Alexandre, J. Camplan, M. Ligonniere, R. Meunier
Sidonie, the new electromagnatic Isotope Separator at Orsay, Part II
Nucl. Instr. and Methods 84 (1970) 45
- [And72] H.R. Anderson
in: The natural Radiation Environment II
Hrgs: J.A.S. Adams (1972)
- [Bad85] J.L. Bada
Amino acid racemization dating of fossil bones
Ann. Rev. Earth Planet. Sci 13 (1985) 241
- [Bag58] E. Bagge, S. Skorka
Der Übergangseffekt der Ultrastrahlungsneutronen an der Grenzfläche Luft-Wasser
Z. Phys 152 (1958) 34
- [Bai79] J.K. Bair, J. Gomez del Campo
Neutron yields from alpha-particle bombardment
Nucl. Sci. Eng 71 (1979) 18
- [Bic72] H. Bichsel
Passage of charged Particles through Matter
American Institute of Physics Handbook 1972, Seite 8-142
- [Bra77a] G. Braun-Elwert, J. Huber, G. Korschinek, W. Kutschera, W. Goldstein, R.L. Hershberger
The negative-ion test injector of the Munich MP Tandem and the Hiconex 834 sputter source
Nucl. Instr. and Methods 146 (1977) 121
- [Bra77b] K. Brand
The reflected beam sputter source
Nucl. Instr. and Methods 141 (1977) 519
- [Brä69] H. Bräuer
Spurenelementgehalte in granitischen Gesteinen des Thüringer Waldes und des Erzgebirges
Dissertation, Bergakademie Freiberg (DDR), 1969
- [Brie78] K. O'Brien, H.A. Sandmeier, G.E. Hansen, J.E. Campell
Cosmic Ray Induced Neutron Background Sources and Fluxes for Geometries of Air over Water, Ground, Iron, and Aluminium
J. Geophys. Res 83 (1978) 114
- [Cam70] J. Camplan, R. Meunier, J.L. Sarrouy
Sidonie, the new electromagnetic Isotope Separator at Orsay, Part I
Nucl. Inst. and Methods 84 (1970) 37
- [Cam81a] J. Camplan, R. Meunier
Design and Use of Pole Face correction coils
Nucl. Instr. and Methods 186 (1981) 445
- [Cam81b] J. Camplan
Ion optics of Isotope separators
Nucl. Instr. and Methods 187 (1981) 157
- [Cha65] I. Chavet
Ion production and Beam formation in an electromagnetic Isotope separator of the Sector type
Nucl. Instr. and Methods 38 (1965) 37

- [Cha67] I. Chavet, R. Bernas
Experimental study of an ion source for electromagnetic isotope separation with a view to high efficiency operation
Nucl. Instr. and Methods 51 (1967) 77
- [Cha70] I. Chavet
Ion extraction and beam formation from a plasma ion source
Proc. Int. Conf. Electromagnetic Isotope Separators and the Techniques of their Applications, Marburg (Eds: H. Wagner, W. Walcher), 1970
- [Cha71] S. Charalambus
Nuclear Transmutation by negative stopped Muons and the activity induced by the Cosmic-Ray Muon
Nucl. Phys A166 (1971) 145
- [Cha78] I. Chavet, M. Kanter, M. Menat
The Divergence profile of a Wedge-Type Ion Beam
Nucl. Instr. and Methods 153 (1978) 317
- [Cha84] I. Chavet, J. Champlan
Effective Abberations in electromagnetic Isotope Separators
Nucl. Instr. and Methods 226 (1984) 250
- [Cra71] F.P. Cranston, D.H. White
Thermal neutron capture cross section
Nucl. Phys A169 (1971) 95
- [Elm82] E. Elmore, L.E. Tubbs, O. Newman, X.Z. Ma, R. Finkel, K. Nishiizumi, J. Beer, H. Oeschger, M. Andree
³⁶Cl bomb pulse measured in a shallow ice core from Dye3, Greenland
Nature 300 (1982) 735
- [Elm84] D. Elmore, P.W. Kubik, L.E. Tubbs, H.E. Gove, R. Teng, T. Hemmick, B. Chrunk, N. Conard
The Rochester Tandem Accelerator Mass Spectrometry Program
Nucl. Instr. and Methods B 5 (1984) 109
- [Erb78] W. Erb
Umladung schwerer Ionen nach Durchgang durch Gase und Festkörper im Energiebereich von 0,2 bis 1,4 MeV/u
GSI-Bericht P-7-78
- [Ern83] H. Ernst, W. Henning, P. Hille, G. Korschinek, W. Mayer, E. Nolte, H.J. Scherer
Beschleunigermassenspektrometrie mit ⁴¹Ca
Jahresbericht 1983, Beschleunigerlaboratorium der Universität und der Technischen Universität München
- [Ern84] H. Ernst, G. Korschinek, P. Kubik, W. Mayer, H. Morinaga, E. Nolte, U. Ratzinger, W. Henning, W. Kutschera, H. Müller, D. Schüll
²⁰⁵Pb Accelerator mass spectrometry of a very heavy radioisotope and the solar neutrino problem
Nucl. Instr. and Methods B 5 (1984) 426
- [Fab88] J.T. Fabryka-Martin
Production of Radionuclides in the Earth and their Hydrogeologic Significance, with Emphasis on Chlorine-36 and Iodine-129
Dissertation, University of Arizona (USA), 1988
- [Fae88] T. Faestermann, A. Gillitzer, G. Korschinek, D. Müller, E. Nolte, E. Roeckl, A. Steinhof
⁴¹Ca BMS im gasgefüllten Magnetspektrographen
Jahresbericht 1987, Beschleunigerlaboratorium der Universität und der Technischen Universität München
- [Fei68] Y. Feige, B.G. Oltman, J. Kastner
Production Rates of Neutrons in Soils due to Natural Radioactivity
J. Geophys. Res 73 (1968) 3135

- [Fin84] D. Fink, O. Meirav, H. Paul, H. Ernst, W. Henning, W. Kutschera, R. Kaim, A. Kaufman, M. Magaritz
Accelerator mass spectrometry at the Rehovot Pelletron Tandem Measurements of Abundances of Cosmogenic Radioisotopes and Future Prospects
Nucl. Instr. and Methods B 5 (1984) 123
- [Fin86] D. Fink, M. Paul, G. Hollos
Production of negative ion beams and sample preparation for ^{41}Ca Accelerator Mass Spectrometry
Workshop on Techniques in Accelerator Mass Spectrometry, Oxford, June 30th-July 1st, 1986
- [Fin87] D. Fink, M. Paul, G. Hollos, S. Theis, S. Vogt, R. Stueck, P. Englert, R. Michel
Measurements of ^{41}Ca spallation cross sections and ^{41}Ca concentrations in the Grant meteorite by Accelerator Mass Spectrometry
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 275
- [Fit72] F.J. Fitch
Selection of suitable material for dating and the assessment of geological error in potassium-argon age determination
in: Calibration of Hominoid Evolution, Eds: W. W. Bishop and J.A. Miller
Scottish Academic Press, 1972
- [Fra76] B. Franzke
Ladungsverteilungen von Ar- und Xe-Ionen in N_2 und C im Energiebereich 0,2 bis 1,4 MeV/amu
UNILAC Projectbericht Nr. 18 PB-4-75, Seite 27
- [Fra84] B. Franczak
MIRKO - An interactive program for beam lines and synchrotrons
Lecture Notes in Physics 215 (1984) 170
- [Gan65] R. Ganssen
Grundsätze der Bodenbildung
BI Hochschultaschenbücher-Verlag, Mannheim 1965
- [Gei82] H. Geissel, Y. Laichter, W.F.W. Schneider, P. Armbruster
Energy loss and energy loss straggeling of fast heavy ions in matter
Nucl. Instr. and Methods 194 (1982) 21
- [Gei83] H. Geissel, Y. Laichter, W.F.W. Schneider, P. Armbruster
Energy loss and energy loss straggeling of 1.4-100 MeV/u heavy ions in gases
Nucl. Instr. and Methods 215 (1983) 329
- [Haa80] H. Haas, J. Banewicz
Radiocarbon Dating of Bone Apatite using Thermal Release of CO_2
Radiocarbon 22 (1980) 537
- [Har82] W.B. Harland, A.V. Cose, P.G. Llewellyn, C.A.G. Pickton, A.G. Smith, R. Walters
A geological time scale
Cambridge University Press 1982
- [Has77] A.A. Hassan, J.D. Termine, C.V. Haynes
Mineralogical Studies on Bone Apatite and their Implications for Radiocarbon Dating
Radiocarbon 19 (1977) 364
- [Hax80] W.C. Haxton, G.A. Cowan
Solar Neutrino Production of Long-Lived Isotopes and Secular Variations in the Sun
Science 210 (1980) 897
- [Hay68] V. Haynes
Radiocarbon: Analysis of Inorganic Carbon of Fossil Bone and Enamel
Science 161 (1968) 687

- [Hen66] L.D. Hendrick, R.D. Edge
Cosmic Rays near the Earth
Phys. Rev 145 (1966) 1023
- [Hen81] W. Henning, W. Kutschera, M. Paul, R.K. Smither, E.J. Stephenson, J.L. Yntema
Accelerator mass spectrometry and radioisotope detection at the Argonne FN tandem facility
Nucl. Instr. and Methods 184 (1981) 247
- [Hen86] W. Henning, B. Glagola, J.G. Keller, W. Kutschera, Z. Liv, M. Paul, K.E. Rehm, R.H. Siemssen
Isobar separation in AMS with a gas-filled enge Split-Pole Magnetic Spectrometer
International Workshop on Techniques in Accelerator Mass Spectrometry, Oxford, 1986
- [Hen87] W. Henning, W.A. Bell, P.J. Billquist, B.G. Glagola, W. Kutschera, Z. Liu, H.F. Lucas, M. Paul, K.E. Rehm, J.L. Yntema
Calcium-41 Concentration in Terrestrial Materials: Prospects for Dating of Pleistocene Samples
Science 236 (1987) 725
- [Hes59] W.N. Hess, H.W. Patterson, R. Wallace, E.L. Chupp
Cosmic-Ray Neutron Energy Spectrum
Phys. Rev 116 (1959) 445
- [Hil82] E.M. Wild, P. Hille, G. Rabeder
Improvements and some results of the N/F-activation method for dating fossil bone
J. Radioanal. Chem 68 (1982) 193
- [Hub80] F. Hubert, A. Fleury, R. Bimbot, D. Gardes
Range and stopping tables for 2.5-100 MeV/nucleon heavy ions in solid
Supplement aux *Annales de Physique* 5 (1980) 1
- [Ike78] M. Ikeya
Electron spin resonance as a method of dating
Archaeometry 20 (1978) 147
- [Isa72] G.L. Isaac
Chronology and the tempo of cultural change during pleistocene
in: Calibration of Hominoid Evolution Hrg.: W.W. Bishop, J.A. Miller
Scottish Academic Press, 1972
- [Ita87] T. Itahashi, T. Fukuda, T. Shimoda, Y. Fujita, T. Yamagata, Y. Nagame
Mass Spectrometry of ^{41}Ca with the RCNP AVF Cyclotron
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 151
- [Kan76] M. Kanter, I. Chavet
A high performance HV power supply and an ion source automatic control system
Nucl. Instr. and Methods 139 (1976) 69
- [Kel86] R. Keller, P. Spädtke, H. Emig
Recent results with a high current, heavy ion source system
Vacuum 36 (1986) 833
- [Ken79] C.M. McKenna
High current dosimetry techniques
Radiation Effects 44 (1979) 93
- [Kir87] R. Kirchner
An ion source with bunched beam release
Nucl. Instr. and Methods B 26 (1987) 204
- [Kle82] J. Klein, R. Middleton, H. Tang
Modifications of an FN tandem for quantitative ^{10}Be measurement
Nucl. Instr. and Methods 193 (1982) 601

- [Kor82] J. Korkisch, I. Steffan, P. Hille, H. Vonach, E. Wild
Uranium series method applied to fossil bone
J. Radioanal. Chem 68 (1982) 107
- [Kor87] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Preisenberger, U. Ratzinger, A. Urban
Accelerator mass spectrometry with completely stripped ^{41}Ca and ^{53}Mn ions at the Munich tandem accelerator
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 67
- [Kub83] P.W. Kubik
Beschleuniger-Massenspektrometrie mit nacktgestriptem ^{36}Cl
Dissertation, Technische Universität München, 1983
- [Kub84] P.W. Kubik, G. Korschinek, E. Nolte
Accelerator mass spectrometry with completely stripped ^{36}Cl ions at the Munich post accelerator
Nucl. Instr. and Methods B 1 (1984) 51
- [Kut88a] W. Kutschera, I. Ahmad, P.J. Billquist, B.G. Glagola, K. Furer, R.C. Pardo, M. Paul, K.E. Rehm, P.J. Slota Jr., R.E. Taylor, J.L. Yntema
Studies towards a method for radiocalcium dating of bones
Proc. of the 13th International Radiocarbon Conference June 20-25, 1988
eingereicht bei *Radiocarbon*
- [Kut88b] W. Kutschera
Argonne National Laboratory, Argonne (USA), private Mitteilung
- [Lal87] D. Lal
Cosmogenic nuclides produced in situ in terrestrial solids
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 238
- [Lem76] G. Lempert, I. Chavet
Practical factors affecting cathode performance in ion sources of the Nier-Bernas type
Nucl. Instr. and Methods 139 (1976) 7
- [Loy85] F. Loyer, T. Andre, B. Ducoudret, J.P. Ratand
New beam diagnostic at GANIL: Very sensitive current transformer in beam lines and counting systems of beams turns in cyclotrons
IEEE Transactions on Nuclear Science NS-32 (1985) 1938
- [Mab71] H. Mabuchi, R. Gensho, Y. Wada, H. Hamaguchi
Phosphorus-32 induced by atmospheric cosmic rays in laboratory chemicals
Geochem. J 4 (1971) 105
- [Mab74] H. Mabuchi, H. Takahashi, Y. Nakamura, K. Notsu, H. Hamaguchi
The Half-Life of ^{41}Ca
J. Anorg. nucl. Chem. 36 (1974) 1687
- [Mai87] H.J. Maier
LMU München, private Mitteilung (1987)
- [Meu70] R. Meunier
A new electrode geometry for the formation of diverging ion beams in the presence of space charge
Proc. Int. Conf. Electromagnetic Isotope Separators and the Techniques of their Applications, Marburg (Eds: H. Wagner, W. Walcher), 1970
- [Mie79] J.E. Mielke
Composition of the Earth's crust and distribution of the elements
in: Review of research on modern problems in geochemistry, Ed: F.R. Siegel, UNESCO, 1979
- [Mid88a] R. Middleton, D. Fink, J. Klein, P. Sharma
 ^{41}Ca concentrations in modern bone and their implication for dating
Proc. of the 13th International Radiocarbon Conference June 20-25, 1988
eingereicht bei *Radiocarbon*

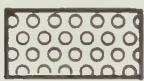
- [Mid88b] J.J. Middelburg, C.H. van der Weijden, J.R.W. Woitties
Chemical processes affecting the mobility of major, minor and trace elements during weathering of granitic rocks
Chemical Geology 68 (1988) 253
- [Mit64] R.L. Mitchell
Trace Elements in Soils
in: Chemistry of the Soil, Ed: F.E. Bear, Reinhold Publishing Corporation, New York
- [Mom86] H. Mommsen
Archäometrie
B.G. Teubner Verlag, Stuttgart 1986
- [Mül72] R. W. Müller
Das UNILAC-Projekt
GSI-Bericht 72-9, GSI Darmstadt, 1972
- [Mug81] S.F. Mughabghab, M. Divadeenam, N.E. Holden
Neutron Cross Section, Vol. 1, Neutron Resonance Parameter and Thermal Cross Sections, Part A:Z=1-60, Academic Press, New York, 1981
- [Mug84] S.F. Mughabghab
Neutron Cross Section, Vol. 1, Neutron Resonance Parameter and Thermal Cross Sections, Part B:Z=61-100, Academic Press, New York, 1984
- [Nic87] F. Nickel, K.-H. Behr, A. Brünle, A. Steinhof
The GSI Medium current mass separator
Nucl. Instr. and Methods B 26 (1987) 14
- [Nis86] K. Nishiizumi, O. Lal, J. Klein, R. Middleton, J.R. Arnold
Production of ^{10}Be and ^{26}Al by cosmic rays in terrestrial quartz in situ and implications for erosion rates
Nature 319 (1986) 134
- [Oak63] K.P. Oakley
in: Science and Archaeology, Eds: D.Brothwell, E. Higgs
Thames and Hudson, London, 1963
- [Ort54] W.C. Ortel
Neutron Production by Cosmic Rays
Phys. Rev 93 (1954) 561.
- [Par84] Particle Data Group
Review of particle properties
Rev. mod. Phys 56 (1984) No.2 Part II, S1
- [Pau83] M. Paul, O. Meirav, W. Henning, W. Kutschera, R. Kaim, M.B. Goldberg, J. Gerber, W. Hering, A. Kaufmann, M. Magaritz
Detection of the ^{36}Cl radioisotope at the Rehovot 14UD-Pelletron Accelerator
Radiocarbon 25 (1983) 785
- [Rai79] G.M. Raisbeck, F. Yiou
Possible use of ^{41}Ca for radioactive dating
Nature 277 (1979) 42
- [Rai80] G.M. Raisbeck, F. Yiou
Progress Report on the possible use of ^{41}Ca for radioactive dating
Revue d'Archeometrie 4 (1980) 51
- [Rai81a] G.M. Raisbeck, F. Yiou
Instability of KH_3^- and potential implications for Detection of ^{41}Ca with a Tandem electrostatic accelerator
Proc. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne (USA) (1981) 426
- [Rai81b] G.M. Raisbeck, F. Yiou
Electromagnetic isotope separation as a method of improving the detection limits of accelerator spectrometry
Nucl. Instr. and Methods 186 (1981) 483

- [Rös72] H.J. Rössler, H. Lange
Geochemical Tables
Elsevier Publishing Company, 1972
- [Ros56] D.C. Rose, K.B. Fenton, J. Katzman, J.A. Simpson
Latitude Effect of the Cosmic Ray Nucleon and Meson Components at Sea level from the Arctic to the Antarctic
Can. J. Phys 34 (1956) 968
- [Sal81] I. Salzmann, M. Menat
The Influence of Sparking on the attainable isotopic Enrichment in electromagnetic isotope separation
Nucl. Instr. and Methods 186 (1981) 21
- [Sar65] J.L. Sarrouy, J. Camplan, J.S. Dionisio, J. Fournet-Fayas, G. Levy, J. Obert
Ion Sources for fast electromagnetic separations of radioisotopes and their application to Nuclear Physics
Nucl. Instr. and Methods 38 (1965) 29
- [Sch67] E. Schopper
Nukleonen in der Atmosphäre
Handbuch der Physik, Bd XLV I/2
K. Sitte (Bandherausgeber), S. Flügge (Herausgeber)
Springer Verlag, 1967
- [Sch70] Ch. Schmelzer
Problems in Heavy Ion Acceleration, S. 1029 und
D. Böhne, Ch. Schmelzer
Existing and Proposed Heavy Ion Linear Accelerators, S. 1047
in: Linear Accelerators
Herausgeber: P. M. Lapostolle, A. L. Septier
North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1970
- [Sch83] D. Schüll
The GSI magnetic spectrometer
Lecture notes in physics 178 (1983) 80
- [Sch84] K.-H. Schmidt, C.-C. Sahm, K. Pielenz, H.-G. Clerc
Some Remarks on the Error Analysis in the case of Poor Statistics
Z. Phys. A - Atoms and Nuclei 316 (1984) 19
- [Sch87] F.H. Schmidt, D.R. Balsley, D.D. Leach
Early expectations of AMS: Greater ages and tiny fractions One failure? - One success
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 97
- [Sch88] D. Schüll
GSI Darmstadt, Private Mitteilung
- [Sha87] P. Sharma, R. Middleton
Sample preparation and Production of negative ions of calcium hydride for ^{41}Ca AMS
Nucl. Instr. and Methods B29 (1987) 63
- [Sim53] J.A. Simpson, R.B. Kretz
Cosmic-Ray Neutron Production in Elements as a Function of Latitude and Altitude
Phys. Rev 90 (1953) 44.
- [Sit67] K. Sitte (Bandherausgeber), S. Flügge (Herausgeber)
Handbuch der Physik, Band XLVI
Springer Verlag, 1967
- [Ste87] A. Steinhof, W. Henning, M. Müller, E. Roeckl, D. Schüll, G. Korschinék, E. Nolte, M. Paul
Accelerator Mass Spectrometry of ^{41}Ca with a positive-ion source and the Unilac Accelerator
Nucl. Instr. and Methods B 29 (1987) 59
- [Ste88] A. Steinhof, K.H. Behr, A. Brünle, C. Bruske, E. Roeckl
Operation of the HORDIS Ion Source at the GSI Medium-Current Separator
GSI Scientific Report 1987, S. 316, GSI Darmstadt 1988

- [Ste89] A. Steinhof, H. Folger, W. Henning, M. Müller, A. Paic, E. Roeckl, D. Schüll
Charge state contributions of potassium and calcium ions and full-stripping probabilities in carbon foils for medium-heavy fast ions
Nucl. Instr. and Methods B 36 (1989) 93
- [Sut84] H. Sutner, R. Baker, G. Bonani, W. Wölfl
A fast beam pulsing system for isotope ratio measurements
Nucl. Instr. and Methods B5 (1984) 242
- [Swe54] H.J. Swetnick
Cosmic-Ray Neutrons in Water at an Altitude of 10600 Feet
Phys. Rev 95 (1954) 793
- [Taylor87] R.E. Taylor
Dating Techniques in Archaeology and Paleoanthropology
Analytical Chemistry 59 (1987) 317A
- [Taylor88] R.E. Taylor, P.J. Slota, W. Henning, W. Kutschera, M. Paul
Radiocalcium dating: Potential applications in archaeology and paleoanthropology
vorgesehen für: Archaeological Chemistry IV, Ed: R.O. Allen
- [Tho88] M.S. Thomsen, J. Heinemeier, P. Hornshøj, H.J. Nielsen, N. Rud
Accelerator mass spectrometry applied to ^{32}Si
Nucl. Instr. and Methods B 31 (1988) 425
- [Tob51] A.R. Tobey, C.G. Montgomery
Neutron Production by Cosmic Rays at Sea Level
Phys. Rev 81 (1951) 517.
- [Wag85] G.A. Wagner, P.E. Zaun
Spaltspuren-Uhr und Thermometer für Gestein
Geowissenschaften in unserer Zeit Nr. 4 (1985) 127
- [Wag87] G.A. Wagner, L. Zöller
Thermolumineszenz: Uhr für Artefakte und Sedimente
Physik in unserer Zeit Nr. 1 (1987) 1
- [Wes78] T.S. West
Trace element determination
- [Wes82] D. West, A.C. Sherwood
Measurement of thick-target (α , n) yields from light elements
Ann. Nucl. Energy 9 (1982) 551
- [Yam63] Y. Yamaguchi
Possible Use of ^{41}Ca in Nuclear Dating
Progress of Theoretical Physics 29 (1963) 567
- [Yam66] M. Yamashita, L.D. Stephens, H.W. Patterson
Cosmic-Ray-Produced Neutrons at Ground Level: Neutron Production Rate and Flux Distribution
J. Geophys. Res 71 (1966) 3817.
- [Yok77] Y. Yokoyama, J.-L. Reyss, F. Guichard
Production of Radionuclides by Cosmic Rays at Mountain Altitudes
Earth Planet. Sci. Lett 36 (1977) 44
- [Zie77] J.F. Ziegler
Helium Stopping Powers and Ranges in all Elemental Matter
Vol. 4 von The Stopping and Ranges of Ions in Matter
Pergamon Press, New York, 1977

Anhang

In den Abbildungen 3.4, 3.11 und 3.14 wurde das Material der einzelnen Teile durch die Schraffur gekennzeichnet. Diese Kennzeichnung ist in Abb.A.1 dargestellt. Der Winkel der Schraffur hat keinerlei Bedeutung, er wurde nur zur Unterscheidung benachbarter Einzelteile aus dem gleichen Material variiert.



Vespel, Teflon, PVC



BeO-Keramik



Al₂O₃-, BN-Keramik



Kupfer



Graphit



Tantal, Molybdän



Edelstahl, Stahl

Abb. A.1 Erläuterung der Kennzeichnung von Materialien durch Schraffuren in den Abbildungen dieser Arbeit.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

An den Anfang möchte ich alle diejenigen stellen, die in ihren Serviceeinrichtungen anonym bleiben, wie die Mitarbeiter der GSI-Werkstatt, des UNILAC's, der Bibliothek und des Mainzer Reaktors, ohne deren Unterstützung vieles nicht möglich gewesen wäre.

Mein besonderer Dank gilt

Prof.Dr. Ernst Roeckl, dessen umfassende Betreuung zu keiner Zeit einengend war, Adolf Brünle und Karl-Heinz Behr, die auch in der langen Anlaufphase unermüdlich zur Seite standen,

Christoph Bruske und Wilfried Hüller, die für alle technischen Probleme eine Lösung wußten und diese auch in die Tat umsetzten,

Dr. Reinhard Kirchner, der ein sachkundiger Ansprechpartner war,

Prof.Dr. Walther Henning, für seinen ansteckenden Optimismus,

Prof.Dr. Michael Paul, für seine Begeisterung bei den gemeinsamen Messungen,

Dr. Michael Müller und Dieter Schüll, die leider nur bei den UNILAC Messungen involviert waren,

Ursula Vogel, Kerstin Licht und Irene Strehl, die die Arbeit in die vorliegende Form brachten,

und

Celine Fries, ohne die ich jetzt nicht so weit wäre,

und meinen Eltern, die diesen Berufsweg erst ermöglichten.

Lebenslauf

- | | |
|-------------------|---|
| 22.02.1959 | geboren in Giessen als Sohn von Ilse und Herbert Steinhof |
| 1965 | Einschulung in die Ludwig-Uhland-Schule in Giessen |
| 1968 | Schulwechsel auf das Liebig-Gymnasium in Giessen |
| 1971 | Schulwechsel an das Gymnasium am Mosbacher Berg in Wiesbaden |
| 15.06.1977 | Erwerb der Allgemeinen Hochschulreife |
| 15.10.1977 | Aufnahme des Studiums der Physik an der Justus-Liebig-Universität in Giessen |
| 15.04.1979 | Wechsel des Studienortes an die Johannes-Gutenberg-Universität in Mainz |
| 12.01.1981 | Diplom-Vorprüfung in Physik |
| 07.03.1985 | Diplomprüfung in Physik |
| 08.03.1985 | Beginn der Promotion und der Berufstätigkeit bei der Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH in Darmstadt |

